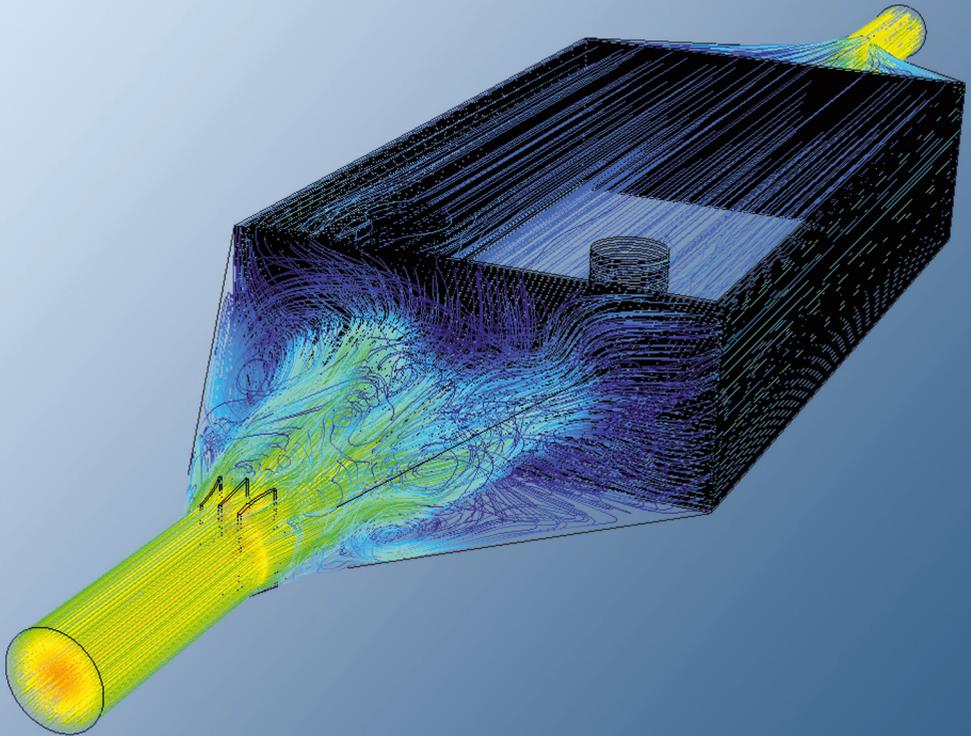


# Konzeption von Membranmodulen zur effizienten Abtrennung von Kohlendioxid aus Gasgemischen

Sebastian Luhr



Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 334  
ISBN 978-3-95806-170-5





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

# Konzeption von Membranmodulen zur effizienten Abtrennung von Kohlendioxid aus Gasgemischen

Sebastian Luhr

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 334

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-170-5

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber  
und Vertrieb:           Forschungszentrum Jülich GmbH  
                                  Zentralbibliothek, Verlag  
                                  52425 Jülich  
                                  Tel.:   +49 2461 61-5368  
                                  Fax:    +49 2461 61-6103  
                                  E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
                                  [www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung:   Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck:                    Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright:              Forschungszentrum Jülich 2016

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 334

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2016)

ISSN 1866-1793  
ISBN 978-3-95806-170-5

Vollständig frei verfügbar über das Publikationsportal des Forschungszentrums Jülich (JuSER)  
unter [www.fz-juelich.de/zb/openaccess](http://www.fz-juelich.de/zb/openaccess).



This is an Open Access publication distributed under the terms of the [Creative Commons Attribution License 4.0](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/),  
which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

# KONZEPTION VON MEMBRANMODULEN ZUR EFFIZIENTEN ABTRENnung VON KOHLENDIOXID AUS GASGEMISCHEN

von Sebastian Luhr

## KURZFASSUNG

Die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung, die einer großen Emissionsquelle angehängt wird, gilt als eine mögliche Brückentechnologie hin zu einem Kohlenstoffdioxid-neutralen Energiesystem. Um diese Technologie konkurrenzfähig gegenüber dem Standard-Trennverfahren für das Post-Combustion-Capture – der chemischen Absorption – zu machen, sind neben der Forschung an Hochleistungs-Membranmaterialien und einem energieeffizienten Abtrennprozess auch die Entwicklung eines Membranmoduls unabdingbar, welches die verbaute Membranfläche effektiv ausnutzt. In der vorliegenden Arbeit wurde daher aufbauend auf einem Konzept des Helmholtz-Zentrum Geesthacht ein neuartiges Modul für Flachmembranen, welches im Gegenstrom betrieben wird, entworfen, fluid- und verfahrenstechnisch analysiert sowie für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas in zwei Schritten ausgelegt.

Im ersten Schritt wurde ein Membranmodul mit einer Membranfläche von 5,66 m<sup>2</sup> mittels Strömungssimulationen hinsichtlich Totzonen, Bypassströmungen und inhomogenen Strömungsverteilungen untersucht. Hierbei wurde eine Gesamtmethodik entwickelt, mit der das gesamte Membranmodul mit vertretbarem Zeitaufwand simuliert werden kann. Dabei werden die Abstandhalter zwischen zwei Membrantaschen des Taschenstapels – genannt Spacer – durch ein validiertes Ersatzmodell mittels eines porösen Körpers mit gleicher Druckverlustcharakteristik approximiert. Die Permeation durch die Membran wurde mittels einer benutzerdefinierten Quellen-Senken-Funktion berücksichtigt. Der aus den Strömungssimulationen berechnete Abtrenngrad wird mit einem Abtrenngrad bei idealer Anströmung und vollständigen Ausnutzung der eingebauten Membranfläche verglichen. Es zeigte sich, dass durch die Verjüngung der Membrantaschen am Rand ca. 27 % des eintretenden Feedgases neben der aktiven Membranfläche im Bypass strömen. Durch Abdichtung dieses Bypasses konnte der Abtrenngrad um 12,8 %-Punkte auf 81,3 % erhöht werden. Eine Variation der Zulaufgeometrie des Membranmoduls durch den Einbau von Leitblechen ergab zwar eine gleichmäßige Strömungsverteilung direkt am Anfang des Membranstapels, brachte jedoch für die gewählte Geometrie keine Verbesserung im Abtrenngrad, da bereits der Gegendruck der in den Feedkanälen eingebauten Spacer die Strömungsverteilung homogenisiert.

Der zweite Schritt in der Auslegung bestand darin, mittels Prozesssimulationen die hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten optimierte Modulgeometrie zu finden. Dabei wurde ein zweistufiger Abtrennprozess zugrunde gelegt und die Modulgeometrie beider Trennstufen simultan durch systematische Variation einzelner Abmessungen optimiert. Hierzu wurde ein quasi-eindimensionales Ersatzmodell für die Simulation des Membranmoduls entwickelt, welches strömungsmechanische Effekte berücksichtigt. Zur Schaffung eines Vergleichsmaßstabs wurde ein Referenzfall definiert und simuliert. Dieser hat eine Membranfläche von 3,1 Mio. m<sup>2</sup> und einen Wirkungsgradverlust von 6,6 %-Punkten. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten belaufen sich auf 68,0 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>. Diese konnten durch die Wahl optimierter Kanalhöhen im Feed und Permeat von 1 mm beziehungsweise 2 mm und gleichzeitig optimierten Eintrittsgeschwindigkeiten in die Membranmodule der ersten Trennstufe von 0,5 m·s<sup>-1</sup> und in die zweite Trennstufe von 1,1 m·s<sup>-1</sup> auf 57,2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> reduziert werden. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass in der zweiten Trennstufe die Unterteilung des Membranmoduls in einen im Gleichstrom betriebenen ersten Abschnitt und einen nachfolgenden Abschnitt, der im Gegenstrom betrieben wird, durch die Ausnutzung eines Spülgaseffektes sinnvoll ist.

# CONCEPTUAL DESIGN OF MEMBRANE MODULES FOR AN EFFICIENT SEPARATION OF CARBON DIOXIDE FROM GAS MIXTURES

by Sebastian Luhr

## ABSTRACT

Membrane-based CO<sub>2</sub>-separation technology attached to large emission sources is considered a possible bridging solution towards a carbon dioxide-neutral energy system. To make this technology competitive with the standard separation process for post-combustion capture – chemical absorption – necessitates the development of a membrane module that uses the installed membrane area effectively, in addition to research on high-performance membrane materials and energy-efficient separation processes. Therefore, based on a concept developed by the Helmholtz Center Geesthacht, in this work a novel module for flat sheet membranes operated in counter-current is fluid-dynamically and procedurally analyzed and designed to enable CO<sub>2</sub>-separation from power plant flue gas in two steps.

In the first step, a membrane module with a membrane area of 5.66 m<sup>2</sup> was investigated regarding dead zones, bypass currents and inhomogeneous flow distributions using computational fluid dynamic (CFD) simulations. Therefore, an overall methodology was developed that enabled simulation of the entire membrane module within a reasonable time. The spacers between two membrane envelopes of a membrane stack are approximated by a validated substitutional model by means of a porous body with equal pressure drop characteristics. Permeation through the membrane was enabled by a user-defined source-and-sink function. The degree of separation calculated in the CFD simulations is compared with that for ideal incident flow and complete utilization of the installed membrane area. It was found that 27 % of the incoming feed gas bypasses the active membrane area through the tapering at the edge of the membrane envelopes. By sealing this bypass, the degree of separation could be increased by 12.8 %-points to 81.3 %. Although a variation in the inlet geometry of the membrane module by installing baffle plates resulted in a uniform flow distribution at the very beginning of the membrane stack, the degree of separation for the chosen geometry could not be improved, since the backpressure of the spacers installed between the feed channels already causes homogenization of the flow distribution.

The second step in the design was to find a module geometry that is optimized with regard to the CO<sub>2</sub> avoidance costs via process simulations. Therefore, a two-stage separation process was taken as a basis and the module geometry of both separation stages was simultaneously optimized by means of a systematic variation of single dimensions. For this, a quasi-one-dimensional substitutional model for the simulation of the membrane module was developed that takes into account fluid mechanical effects. To provide a standard of comparison, a reference case was defined and simulated. This has a membrane area of 3.1 million m<sup>2</sup> and an efficiency loss of 6.6 %-points. The CO<sub>2</sub> avoidance costs amount to 68.0 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> and this could be reduced to 57.2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> with the choice of optimized channel heights in the feed and permeate of 1 mm and 2 mm, respectively. At the same time, the inlet velocity into the membrane stack was optimized to 0.5 m·s<sup>-1</sup> in the first separation stage and 1.1 m·s<sup>-1</sup> in the second. Furthermore, it was shown that in the second separation stage the division of the membrane module into a first part that is operated in a co-current and a subsequent part operated in a counter-current is useful because a sweep gas effect is exploited.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b> .....	<b>1</b>
1.1	Ausgangslage und Problemstellung .....	2
1.2	Zielsetzung und Methodik der Arbeit .....	3
<b>2</b>	<b>Grundlagen der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas</b> .....	<b>5</b>
2.1	Grundbegriffe der Membrantechnik .....	5
2.2	Bewertungskriterien für die membranbasierte CO <sub>2</sub> -Abtrennung .....	6
2.3	Polyactive® als Gastrennmembran zur CO <sub>2</sub> -Abtrennung .....	9
2.4	Membranmodule .....	13
2.4.1	Modulbauformen .....	14
2.4.2	Einfluss von Spacern auf die Triebkraft .....	18
2.4.3	Modulverschaltungen .....	22
2.5	Prozesstechnische Einbindung der membranbasierten CO <sub>2</sub> -Abtrennung .....	24
2.5.1	Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen .....	24
2.5.2	Randbedingungen zur Integration in die Prozesskette .....	26
2.5.3	Membranbasierter CO <sub>2</sub> -Abtrennprozess des IEK-3 .....	30
<b>3</b>	<b>Gesamtmodell zur Modulauslegung</b> .....	<b>33</b>
3.1	Methodik der Modulauslegung .....	33
3.2	Modellgrundlagen der Membrantechnik .....	35
3.2.1	Gaspermeation in Polymermembranen .....	35
3.2.2	Konzentrationspolarisation in Spacer-gefüllten Kanälen .....	40
3.2.3	Druckverlust im Membranmodul und Verteilsystem .....	43
3.3	Grundlagen fluiddynamischer Simulationen .....	45
3.3.1	Diskretisierung des Strömungsgebiets .....	45
3.3.2	Bilanzgleichungen der Fluiddynamik .....	49
3.3.3	Turbulenzmodellierung .....	50
3.3.4	Poröse Körper als Ersatzmodell für Spacer-gefüllte Kanäle .....	52
3.4	Auslegung von Querschnittserweiterungen .....	54
3.5	Kostenmodell des membranbasierten Abtrennprozesses .....	58
3.5.1	Stromgestehungskosten des Kohlekraftwerks mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung .....	58
3.5.2	CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten .....	67
<b>4</b>	<b>Strömungsoptimierte Modulgestaltung des Prototyp-Moduls</b> .....	<b>69</b>
4.1	Prototyp-Modul in Standardausführung .....	69
4.1.1	Prototyp-Aufbau des Gegenstrommoduls .....	69

4.1.2	Druckverlustmodellierung in ANSYS® FLUENT® .....	71
4.1.3	Simulation des Prototyp-Moduls in Standardausführung .....	74
4.2	Anströmung des Membranstapels .....	78
4.2.1	Strömungsverteilung im divergenten Kanal ohne und mit Gegendruck.....	79
4.2.2	Variation der Anströmgeschwindigkeit und des Feeddruckes .....	81
4.2.3	Einsatz von Leitblechen zur homogenen Anströmung des Membranstapels ...	84
4.3	Bypass-Strömung an der Membranverjüngung .....	88
4.4	Erkenntnisse über die optimierte Strömungsführung im Gegenstrommodul .....	91
<b>5</b>	<b>Kostenbasierte Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab.....</b>	<b>93</b>
5.1	Freiheitsgrade und Restriktionen in der Modulauslegung .....	94
5.2	Referenzmodul im Kraftwerksmaßstab.....	97
5.2.1	Festlegung der Modulgeometrie des Referenzmoduls.....	97
5.2.2	Integration des Referenzmoduls in den CO <sub>2</sub> -Abtrennprozess.....	98
5.2.3	CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten mit integriertem Referenzmodul.....	103
5.3	Ermittlung der optimierten Eintrittsgeschwindigkeiten.....	108
5.3.1	Maximal tolerierbare Eintrittsgeschwindigkeit .....	108
5.3.2	Variation der Kanalhöhe.....	110
5.3.3	Optimierte Eintrittsgeschwindigkeiten im Abtrennprozess .....	113
5.3.4	Optimierte Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe .....	115
5.4	Einteilung des Membranmoduls in Kompartimente.....	116
5.4.1	Kompartimente mit gleicher Länge.....	117
5.4.2	Kompartimente mit unterschiedlicher Länge.....	120
5.4.3	Schlussfolgerungen bezüglich der Einteilung in Kompartimente.....	121
5.5	Vergleich Gegenstrombetrieb und Gleichstrombetrieb .....	121
5.5.1	Vergleich der Abtrenngrade bei hohem Druckverhältnis.....	122
5.5.2	Wasserdampf als Spülgas im Permeat bei hohem Druckverhältnis .....	123
5.5.3	Partieller Gleichstrombetrieb in der zweiten Trennstufe.....	125
5.5.4	Schlussfolgerungen zur Strömungsführung.....	127
5.6	Bestimmung der Modulhöhe und Modulbreite .....	128
5.6.1	Abtrennperformance und CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten.....	128
5.6.2	Packungsdichte und Anzahl der Membranmodule.....	130
5.6.3	Auslegung der Anschlussrohre.....	133
5.6.4	Auswahl der Modulhöhe und Modulbreite.....	137
5.7	Variation von Prozessparametern und Randbedingungen.....	138
5.7.1	Variation der Triebkraft in der ersten Trennstufe .....	138

5.7.2	Variation der Membraneigenschaften.....	143
5.7.3	Teillastverhalten des Abtrennprozesses.....	145
5.8	Ergebnisse der kostenbasierten Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab .....	150
<b>6</b>	<b>Diskussion der Ergebnisse.....</b>	<b>155</b>
6.1	Maßnahmen zur optimierten Strömungsführung im Gegenstrommodul.....	155
6.2	Erkenntnisse aus der kostenbasierten Modulauslegung.....	159
6.3	Begründete Auswahl einer Modulgeometrie im Kraftwerksmaßstab .....	165
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung.....</b>	<b>167</b>
<b>8</b>	<b>Anhang.....</b>	<b>171</b>
8.1	Abtrennrouten .....	171
8.2	Post-Combustion Capture Prozesse .....	174
8.3	Zusammensetzung der verschiedenen Steinkohlen .....	178
8.4	Umrechnung der Diffusionskoeffizienten .....	178
8.5	Matrixrechnung mit ungeradem Exponenten .....	180
8.6	Formelübersicht zur Bestimmung der Rohrreibungszahl .....	180
8.7	Lösungsprozess der Bilanzgleichungen in ANSYS® FLUENT®.....	182
8.8	Zeitliche Entwicklung des Chemical Engineering Plant Cost Index.....	184
8.9	Ergänzungen zu Kapitel 4 .....	185
8.10	Ergänzungen zu Kapitel 5 .....	191
	<b>Abbildungsverzeichnis .....</b>	<b>203</b>
	<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>213</b>
	<b>Nomenklatur .....</b>	<b>215</b>
	<b>Literatur.....</b>	<b>223</b>



# 1 Einleitung

In Zeiten industrieller Umwelteinwirkungen und globaler Klimaveränderungen bekommt die ressourcen- und umweltschonende Gestaltung von industriellen und vor allem verfahrenstechnischen Prozessen eine immer größere Bedeutung. Neben der Neugestaltung beziehungsweise Anpassung der eigentlichen Wertschöpfungsprozesse sind auch die Aufbereitung der eingesetzten Stoffe sowie die Nachbearbeitung, Weiterverarbeitung und Entsorgung anfallender Stoffströme wesentlicher Bestandteil dieses Optimierungsprozesses. Gesellschaftliches Ziel ist es, schädliche Stoff- und Energieaustauschströme mit der Umwelt und deren Umweltwirkungen weitgehend zu minimieren. Vor allem weitreichende Folgen wie der Anstieg des Meeresspiegels, die Versauerung der Gewässer, der Verlust von Arten und Ökosystemen oder die Zunahme von Wetterextremen müssen vermieden werden [1].

Die meisten dieser Phänomene sind auf den anthropogenen Einfluss auf die globale, gemittelte Oberflächentemperatur zurückzuführen. Diese stieg zwischen den Jahren 1956 und 2005 in jeder Dekade um durchschnittlich 0,13 °C an [2, S. 30]. Daher hat sich als greifbares, messbares Ziel zur Begrenzung dieser Phänomene das sogenannte Zwei-Grad-Ziel weltweit etabliert. Es besagt, dass die globale, gemittelte Oberflächentemperatur um maximal 2 °C gegenüber der vorindustriellen Zeit ansteigen darf. Laut Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) gilt es als sehr wahrscheinlich<sup>1</sup>, dass die Erhöhung der Treibhausgaskonzentration in der Atmosphäre aufgrund des resultierenden, größeren Strahlungsantriebs wesentlich zum Anstieg der Durchschnittstemperatur beiträgt [2, S. 39]. Daher fordert der Rat der Europäischen Union eine Reduktion der Treibhausgasemissionen bis zum Jahr 2050 um 80 bis 95 % gegenüber dem Jahr 1990 in den Industrieländern, um das Zwei-Grad-Ziel einzuhalten [3]. Weiterhin gilt eine weltweite durchschnittliche Emissionsreduktion um 50 % gegenüber dem Jahr 1990 bis zum Jahr 2050 als erklärte Absicht [3].

Die weltweiten anthropogenen Treibhausgasemissionen liegen im Jahr 2010 bei 48,7 Gigatonnen – ausgedrückt als CO<sub>2</sub>-Äquivalent –, davon sind 30,2 Gigatonnen beziehungsweise 62 % den Emissionen von Kohlenstoffdioxid durch Wandlung von Primärenergie zuzuschreiben [4, S. 51 und 246]. Die anthropogenen CO<sub>2</sub>-Emissionen machen somit einen Großteil des Treibhauseffekts aus. Sie verursachen einen Überschuss an CO<sub>2</sub> in einem sonst ausgewogenen Gleichgewicht zwischen den Kohlenstoffreservoirs Atmosphäre, Ozean und Biomasse, wobei die Austauschströme zwischen den Kohlenstoffreservoirs nur in einem Zeitraum von mehreren tausend Jahren den Anstieg der CO<sub>2</sub>-Konzentration in der Atmosphäre mildern [5, S. 5].

Die Entwicklung der energiebezogenen CO<sub>2</sub>-Emissionen lässt sich durch eine abgewandelte Form der sogenannten Kaya-Identität beschreiben [6; 7]. Das Produkt aus der Bevölkerung, dem Bruttoinlandsprodukt pro Kopf und der Energieintensität ergibt den weltweiten Primärenergiebedarf, der sich im Jahr 2010 auf ungefähr 12,7 Gigatonnen Öl-Äquivalent beziehungsweise 532 EJ belief [4, S. 302]. In drei Szenarien<sup>2</sup> der International Energy Agency (IEA) wird ein Anstieg des Primärenergiebedarfs von 16 % bis 46 % bis zum Jahr 2035

---

<sup>1</sup> Dem Terminus „sehr wahrscheinlich“ wird in [2] eine Wahrscheinlichkeit von >90% zugeordnet.

<sup>2</sup> Das Current Policies Szenario geht von einer unveränderten weltweiten Energiepolitik aus, während das New Policies Szenario die Umsetzung aktueller Ankündigungen zu Klima- und Energiepolitik berücksichtigt. Im 450 Szenario wird ein Entwicklungspfad in der weltweiten Energiepolitik angenommen, bei dem die Konzentration der Treibhausgase in der Atmosphäre langfristig auf 450 ppm begrenzt wird. Dies ist gleichbedeutend mit einer 50-prozentigen Wahrscheinlichkeit, dass das Zwei-Grad-Ziel eingehalten wird.

prognostiziert. Der Anstieg ist einerseits damit zu begründen, dass für die nächsten Jahrzehnte ein nicht beeinflussbares Bevölkerungswachstum vorhergesagt wird. Andererseits wächst das Bruttoinlandsprodukt pro Kopf aufgrund des steigenden Wohlstands und des schnellen Wirtschaftswachstums vor allem in den Schwellenländern. Gedrosselt wird der Energiebedarf durch eine anhaltende Verbesserung der Energieintensität durch energieeffizientere Prozesse.

Der in die Atmosphäre emittierte CO<sub>2</sub>-Massenstrom ergibt sich aus dem Primärenergiebedarf und der produzierten Menge CO<sub>2</sub> pro Megawattstunde abzüglich der neu gebundenen Menge CO<sub>2</sub>. Um trotz des Anstiegs des Primärenergiebedarfs die CO<sub>2</sub>-Emissionen weltweit zu mindern, sind neben der verbesserten Energieintensität die bei der Energiewandlung produzierte und die neu gebundene Menge CO<sub>2</sub> wichtige Einflussgrößen. Zum einen kann die Menge an produziertem CO<sub>2</sub> nachhaltig beispielsweise durch den Einsatz erneuerbarer Energien oder regenerativ erzeugten Wasserstoffs im Verkehrssektor verringert werden [8]. Zum anderen ist eine Separation des im fossil befeuerten Kraftwerk entstehenden CO<sub>2</sub> möglich, sodass es von der Atmosphäre ferngehalten wird. Die zweite Option wird vor allem unter dem Gesichtspunkt diskutiert und erforscht, dass die fossilen Brennstoffe in allen Szenarien der International Energy Agency weiterhin große Bedeutung bei der zukünftigen Energiewandlung haben. Im Jahr 2010 betrug der Anteil fossiler Brennstoffe an der Deckung des weltweiten Primärenergiebedarfs mehr als 80 % [4, S. 51]. Dieser Anteil wird sich im Current Policies Szenario bis 2035 nicht ändern, im New Policies Szenario und im 450 Szenario sinkt er auf 75 % beziehungsweise 63 % [4, S. 51].

### 1.1 Ausgangslage und Problemstellung

Um das Zwei-Grad-Ziel einzuhalten, halten unter anderem die Europäische Kommission und die International Energy Agency die Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen durch Abscheidung von CO<sub>2</sub> an großen Punktquellen wie konventionellen Kraftwerks- und Industrieprozessen und anschließender Weiterverwendung beziehungsweise Speicherung für notwendig [4, S. 25; 9]. Diese Reduktionsoption ist auch unter der englischen Bezeichnung „Carbon Dioxide Capture, Utilization and Storage“ (CCUS) bekannt und gilt als Brückentechnologie hin zu einer kohlenstoffarmen Stromerzeugung [10, S. 63]. Je nach Szenario der Energy Roadmap 2050 der Europäischen Kommission könnten fossil befeuerte Kraftwerke mit CO<sub>2</sub>-Abscheidung 2050 zwischen 7 % und 32 % der weltweiten Bruttostromerzeugung ausmachen [11, S. 66-77]. Die Diskrepanz der Anteile von CCUS an der Bruttostromerzeugung liegt in der Annahme unterschiedlicher Ausbau- und Entwicklungspfade der anderen emissionsmindernden Technologien. Alle Szenarien sind so ausgelegt, dass eine Reduktion der energiebezogenen CO<sub>2</sub>-Emissionen bis 2030 um 40 % und bis 2050 um 85 % erreicht und somit das Ziel der Reduktion der Treibhausgasemissionen um 80 % bis 2050 eingehalten wird [11, S. 3].

Da der prozentuale Anteil CO<sub>2</sub>, der in chemischen Produkten und Kraftstoffen verwertbar wäre, an den weltweiten CO<sub>2</sub>-Emissionen zu maximal 6 % abgeschätzt wird [4, S. 246 ; 12, S. 16], wird der Hauptanteil des abgetrennten CO<sub>2</sub> gespeichert. Hierbei kommen Öl- und Gasfelder oder tiefe, saline Aquifere als Speicherstätten am ehesten in Frage [10]. Die Speicherung des CO<sub>2</sub> in Öl- und Gasfeldern wird auch zur Erhöhung der Ausbeute dieser Felder diskutiert und erforscht. Die CO<sub>2</sub>-Injektion in die Speicherstätte ist dabei als Elementarfluss zu verstehen, der jedoch keine in der Ökobilanz zu berücksichtigende Umweltwirkung hat, solange das CO<sub>2</sub> nicht aus der Speicherstätte aufgrund von Leckagen entweicht.

Das durch die Oxidation von Kohlenstoff bei der Energiewandlung aus fossilen Brennstoffen unumgänglich entstehende CO<sub>2</sub> kann zu verschiedenen Zeitpunkten innerhalb des Prozesses anfallen und abgetrennt werden. In konventionellen Dampfkraftwerken ist heutzutage die Verbrennung eines Kohlenwasserstoffs mit Luft am weitesten verbreitet. Die dabei frei werdende Wärme wird zur Dampferzeugung genutzt. Der Dampf treibt eine an einen Stromgenerator angeschlossene Dampfturbine an. Das bei der Verbrennung entstehende Rauchgas enthält nach der konventionellen Rauchgasreinigung hauptsächlich CO<sub>2</sub> und Stickstoff, die voneinander getrennt werden müssen. Dieses sogenannte Post-Combustion Capture kann als nachgeschaltete Technik mit verschiedenen Abtrenntechniken realisiert werden. Die chemische Absorption mittels Monoethanolamin-Wäsche ist die am weitesten ausgereifte CO<sub>2</sub>-Abtrenntechnik. Nachteilig sind vor allem die schädlichen Umweltwirkungen der chemischen Wäsche. Zum einen erhöht sich der Brennstoffbedarf aufgrund des hohen Wirkungsgradverlustes von ca. 9 bis 14 %-Punkten, zum anderen führt die Bildung von Aerosoltröpfchen zu Emissionen von Aminen und deren Zersetzungsprodukten [13; 14].

Als Alternative der zweiten Generation mit geringeren Umweltwirkungen wird die CO<sub>2</sub>-Abtrennung mittels Gastrennmembranen gesehen. Hierbei werden keine umweltschädlichen Chemikalien genutzt. Zur Minimierung der Wirkungsgradverluste membranbasierter CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesse werden neue Membranmaterialien mit verbesserter Abtrennperformance erforscht und der gesamte Abtrennprozess unter Annahme einer vollständig nutzbaren Membranfläche analysiert. Daneben ist auch die Konzeption eines für die technische Anwendung geeigneten und strömungsoptimierten Membranmoduls wichtiger Bestandteil der Untersuchung membranbasierter CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesse. Hier setzt die vorliegende Arbeit an.

### **1.2 Zielsetzung und Methodik der Arbeit**

Ziel dieser Arbeit ist es, ein neuartiges Membranmodul für die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung im Post-Combustion Capture zu konzipieren, welches die eingebaute Membranfläche möglichst ausnutzt. Dieses Membranmodul wird so ausgelegt und in den zweistufigen Trennprozesses integriert, dass die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten dieses CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses – bestehend aus Betriebs- und Investitionskosten – für eine gegebene Trennaufgabe minimiert werden. Dabei wird die in Abbildung 1-1 dargestellte Vorgehensweise verfolgt.

Den Ausgangspunkt bildet der am Helmholtz-Zentrum Geesthacht entwickelte Entwurf eines Membranmoduls für Flachmembranen, welches im Gegenstrom betrieben werden soll. In einem ersten Schritt wird die Geometrie eines Prototyp-Moduls festgelegt. Dieses Prototyp-Modul ist mit einer Membranfläche von ca. 5,66 m<sup>2</sup> auf Pilotanlagengröße dimensioniert. Mittels computergestützter Fluidodynamik-Simulationen (CFD-Simulationen) mit der Software ANSYS® FLUENT® 14.5 werden in Kapitel 4 anhand dieses Prototyp-Moduls konstruktive Maßnahmen untersucht, um eine gleichmäßige, vollständige Überströmung der eingebauten Membranfläche zu ermöglichen. Insbesondere werden der Zulaufbereich zwischen Anschlussrohr und Membranstapel optimiert und Totzonen und Bypass-Strömungen minimiert. Die Abtrennperformance wird für verschiedene Einstellungen im Membranmodul mit jener verglichen, die sich bei Simulationen dieses Moduls mithilfe von Aspen Plus® V8.4 ergibt. Bei den Simulationen in Aspen Plus® wird ein eindimensionales Modell des Membranmoduls angenommen, bei dem der gesamte Membranstapel ideal angeströmt wird und weder Totzonen noch Bypass-Strömungen auftreten. Mit diesem Vergleich werden Abweichungen der Abtrennperformance unter Annahme einer realen Strömungsverteilung von der Abtrennperformance bei idealer Strömungsverteilung quantifiziert. Aus diesen Strömungssimulationen

und den Maßnahmen zur optimierten Strömungsführung werden erste Geometriegrößen des Membranmoduls abgeleitet.

Weitere Abmessungen des Membranmoduls im Kraftwerksmaßstab werden in Kapitel 5 mittels Simulationen mit der Software Aspen Plus® V8.4 ermittelt. Der zugrunde gelegte, zwei-stufige Abtrennprozess, der am Institut für Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3) entworfen wurde [15], wird dem Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen (RWK NRW) [16] als End-of-Pipe-Technologie angehängt. Mit dem CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad und der CO<sub>2</sub>-Reinheit, die für den Transport des CO<sub>2</sub> erforderlich ist, werden die Randbedingungen für die Behandlung des gesamten Kraftwerksrauchgases definiert. Die sich aus diesen Anforderungen ergebende Membranfläche in jeder Abtrennstufe wird für eine Referenzgeometrie der Membranmodule beider Trennstufen ermittelt. Bisherige Analysen dieses Abtrennprozesses haben die notwendige Membranfläche ohne Berücksichtigung einer Modulgeometrie bestimmt. Um Geometriegrößen des Moduls ableiten zu können, werden in der vorliegenden Arbeit eine konkrete Modulgeometrie und die sich aus ihr ergebenden Einflüsse auf die Abtrennperformance in die Modellierung einbezogen. Ausgehend von der Referenzgeometrie werden Geometriegrößen der Membranmodule wie beispielsweise die Kanalhöhen zunächst losgelöst vom Abtrennprozess systematisch variiert und diese hinsichtlich der Membranfläche für einen konstanten Abtrenngrad optimiert. Verringert sich die Membranfläche durch die Geometrievariation, wird der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess mit integriertem Membranmodul für die optimierte Modulgeometrie simuliert. Es werden die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten dieser Variante des Abtrennprozesses bestimmt, um beurteilen zu können, ob die Geometrievariation diese Kosten reduziert. Die Abhängigkeit der Abtrennperformance einer Trennstufe auf die Performance der anderen Trennstufe wird damit berücksichtigt, sodass eine Verbesserung des gesamten Trennprozesses gewährleistet ist. Zudem werden Sensitivitäten der Abtrennperformance hinsichtlich wichtiger Parameter des Kraftwerks- und Abtrennprozesses sowie der Membran analysiert. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen führen zu einer begründeten Auswahl einer kostenoptimierten und fluiddynamisch optimierten Modulgeometrie in Kapitel 6.

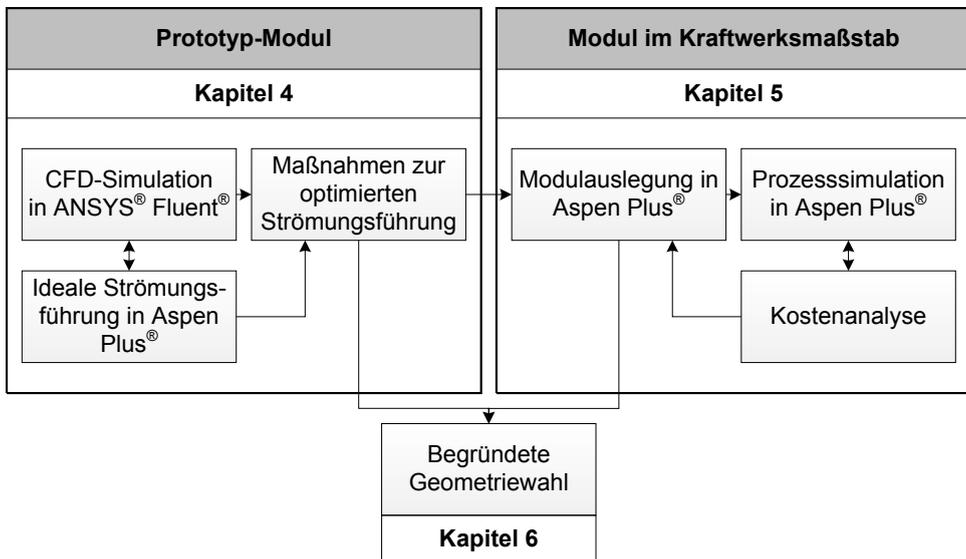


Abbildung 1-1: Methodisches Vorgehen zur Konzeption und Auswahl des Membranmoduls

## 2 Grundlagen der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas

Die Grundlagen der in der vorliegenden Arbeit untersuchten, membranbasierten Gastrenntechnik werden in den nachfolgenden Abschnitten geschildert. Zunächst werden Grundbegriffe der Membrantechnik erläutert. Des Weiteren werden die in dieser Arbeit verwendeten Bewertungskriterien zum Vergleich alternativer Varianten des Abtrennprozesses definiert. Schließlich wird auf Membranmaterialien und Membranmodule eingegangen, die für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgasen in Frage kommen. Besonders die Eigenschaften des in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten Membranmaterials und Membranmoduls werden angegeben. Zudem wird der Einfluss von in der Membrantechnik eingesetzten Spacern auf die Abtrennperformance erläutert, welcher in den Prozess- und CFD-Simulationen des Membranmoduls berücksichtigt wird. Weiterhin werden alternative Modulverschaltungen innerhalb einer Trennstufe vorgestellt.

### 2.1 Grundbegriffe der Membrantechnik

Zum besseren Verständnis der folgenden Beschreibung der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas werden die wichtigsten Stoffströme und Begriffe kurz erläutert. Der in Abbildung 2-1 dargestellte, in die Abtrenneinheit eintretende Feed ist der Zulaufstrom, der in das Retentat – den zurückgehaltenen Teil – und das Permeat – den die Membran passierenden Teil – getrennt wird. Hierbei wird die von der Membran zurückgehaltene Komponente im Retentat angereichert, während sich die bevorzugt permeierende Komponente im Permeat anreichert. Das Verhältnis von Permeatstrom zu Feedstrom wird Stufenschnitt genannt [17, S. 381].

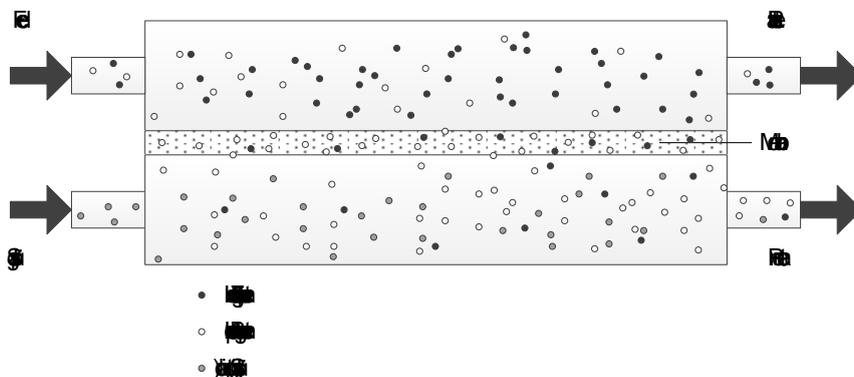


Abbildung 2-1: Schematische Darstellung einer membranbasierten Gastrennung in Anlehnung an [18, S. 1]

Für die Permeation durch eine dichte Membran ist die Differenz des elektrochemischen Potentials zwischen den räumlich getrennten Teilvolumina der Trenneinheit die universelle Triebkraft [18, S. 10; 19]. Bei der Gaspermeation ist unter der Annahme eines idealen Gases die Partialdruckdifferenz die Triebkraft. Um die Triebkraft der Permeation zu erhöhen, kommen grundsätzlich vier Techniken zum Einsatz. Der Partialdruck auf der Feedseite der Membran kann durch einen erhöhten Feeddruck mittels Kompression oder durch einen er-

höhten Anteil der bevorzugt permeierenden Komponente vergrößert werden. Die Rezirkulation eines mit der bevorzugt permeierenden Komponente angereicherten Gemischs ist eine Möglichkeit, den Massenanteil dieser Komponente im Feed zu erhöhen, und kann in mehrstufigen Abtrennprozessen für eine Verringerung der Gesamtmembranfläche bewirken. Auf der Permeatseite der Membran kann ein Eingangsstrom – das sogenannte Spülgas – eingesetzt werden, um die Triebkraft der Permeation durch Verdünnung der permeierenden Komponenten auf der Permeatseite zu vergrößern. Ein verminderter Druck auf der Permeatseite – erzeugt durch eine Vakuumpumpe – verringert den Partialdruck im Permeat ebenfalls.

Die zwei maßgeblichen Eigenschaften eines Membranmaterials zur Charakterisierung der Trenneigenschaften sind die Permeabilität und die ideale Selektivität. Die Permeabilität  $P_i$  ist ein temperaturabhängiges Maß für die Durchlässigkeit der Membran für eine Komponente  $i$  und wird in der Einheit Barrer<sup>3</sup> angegeben. Sie kann auch von den anderen permeierenden Komponenten beeinflusst werden, die das Membranmaterial zum Beispiel aufquellen lassen oder freie Räume besetzen. Während die Permeabilität eine Eigenschaft des Membranmaterials ist, ist die Permeanz  $L_i$  gemäß Gl. 2-1 als auf die Membrandicke  $\delta_M$  bezogene Permeabilität eine Eigenschaft einer bestimmten, hergestellten Membran mit dieser Dicke.

$$L_i = \frac{P_i}{\delta_M} \quad \text{Gl. 2-1}$$

Die ideale Selektivität  $\alpha_{ij}$  ist eine Eigenschaft des Membranmaterials, die sich unter Annahme freien Permeatablaufs und eines Vakuums im Permeat aus der Definition der Prozessselektivität  $\alpha_{\text{Prozess},ij}$  nach Gl. 2-2 ableitet [18, S. 449ff.]. Die Prozessselektivität beschreibt das Verhältnis der Anreicherung der Komponente  $i$  gegenüber Komponente  $j$  im Permeat im Vergleich zum Ausgangsverhältnis der Stoffmengenanteile der beiden Komponenten. Die ideale Selektivität gibt gemäß Gl. 2-3 als Quotient der Permeabilitäten zweier Komponenten  $i$  und  $j$  den Unterschied der Permeationsraten dieser Komponenten an, wenn für beide die gleiche Triebkraft gelten würde. Wird Komponente  $i$  als diejenige Komponente festgelegt, die sich bevorzugt im Permeat anreichern soll, so werden Membranmaterialien für die Trennaufgabe verwendet, bei denen die Permeabilität  $P_i$  und die ideale Selektivität  $\alpha_{ij}$  möglichst hoch sind. Wenn nicht anders erwähnt handelt es sich in der vorliegenden Arbeit bei dem Begriff Selektivität um die ideale Selektivität, die durch Gl. 2-3 bestimmt wird.

$$\alpha_{\text{Prozess},ij} = \frac{x_{P,i} / x_{P,j}}{x_{F,i} / x_{F,j}} \quad \text{Gl. 2-2}$$

$$\alpha_{ij} = \frac{P_i}{P_j} \quad \text{Gl. 2-3}$$

## 2.2 Bewertungskriterien für die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Allgemein werden Trennprozesse eingesetzt, um in Produktströmen eine Komponente an- oder abzureichern. Dabei sind gewisse Reinheitsanforderungen beziehungsweise Produktqualitäten zu berücksichtigen. Zum einen sollte ein gewisser An- beziehungsweise Abreicherungsgrad erreicht werden, zum anderen sind Grenzwerte für Konzentrationen von Verunreinigungen einzuhalten. Der Prozess sollte zudem unter möglichst geringem Rohstoff- und Energieeinsatz ablaufen und kostengünstig sein. Weiterhin beeinflussen die jeweils vorliegenden Umgebungs- und Einsatzbedingungen die Langzeitstabilität der Anlagenteile.

<sup>3</sup> 1 Barrer = 10<sup>-10</sup> cm<sup>3</sup>(i.N.)·cm·cm<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>·cmHg<sup>-1</sup> = 7,5·10<sup>-19</sup> m<sup>3</sup>(i.N.)·m·m<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>·Pa<sup>-1</sup>.

Bezogen auf die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas ergeben sich somit folgende Bewertungskriterien:

- CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad und CO<sub>2</sub>-Reinheit im Produktstrom
- CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten beziehungsweise Stromgestehungskosten
- Langzeitstabilität und –performance bei Einsatz im Kraftwerksrauchgas

Der CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad des gesamten Abtrennprozesses  $Ab_{\text{Prozess,CO}_2}$  ist nach Gl. 2-4 definiert als Verhältnis von abgetrenntem Massenstrom CO<sub>2</sub> im Produktstrom und dem Massenstrom CO<sub>2</sub>, der aus der vorgelagerten Reinigungsstufe des Rauchgases in den Trennprozess eintritt. Wird im Fall der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung nur eine Trennstufe mit einer Parallelschaltung mehrerer identischer Membranmodule betrachtet und ausgelegt, ist der Abtrenngrad des Moduls  $Ab_{\text{Modul,CO}_2}$  nach Gl. 2-5 definiert als das Verhältnis der CO<sub>2</sub>-Ströme im Permeat  $\dot{n}_{\text{P,Modul,CO}_2}$  und Feed  $\dot{n}_{\text{F,Modul,CO}_2}$  der Trennstufe. Im Folgenden wird vereinfacht auch von Abtrenngrad für den CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad gesprochen.

$$Ab_{\text{Prozess,CO}_2} = \frac{\dot{n}_{\text{aus,Produktstrom}} \cdot x_{\text{aus,Produktstrom,CO}_2}}{\dot{n}_{\text{aus,konv. Reinigung}} \cdot x_{\text{aus,konv. Reinigung,CO}_2}} \quad \text{Gl. 2-4}$$

$$Ab_{\text{Modul,CO}_2} = \frac{\dot{n}_{\text{P,Modul}} \cdot x_{\text{P,Modul,CO}_2}}{\dot{n}_{\text{F,Modul}} \cdot x_{\text{F,Modul,CO}_2}} = \frac{\dot{n}_{\text{P,Modul,CO}_2}}{\dot{n}_{\text{F,Modul,CO}_2}} \quad \text{Gl. 2-5}$$

Für den im vorliegenden Fall angenommenen zweistufigen Abtrennprozess mit Rezirkulation des Permeatstroms der zweiten Trennstufe lässt sich der CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad des Prozesses aus den Abtrenngraden der ersten und zweiten Trennstufe über Gl. 2-6 bestimmen.

$$Ab_{\text{Prozess,CO}_2} = \frac{Ab_{\text{Trennstufe1,CO}_2} \cdot Ab_{\text{Trennstufe2,CO}_2}}{1 - Ab_{\text{Trennstufe1,CO}_2} + Ab_{\text{Trennstufe1,CO}_2} \cdot Ab_{\text{Trennstufe2,CO}_2}} \quad \text{Gl. 2-6}$$

Die Definition des CO<sub>2</sub>-Abtrenngrades eines Moduls ist vor allem wichtig für die Bewertung der Abtrennperformance bei den Strömungssimulationen. Durch die Strömungssimulationen ergibt sich der durch die nicht-ideale, inhomogene Strömungsverteilung geminderte CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad  $Ab_{\text{Modul,Strömung,CO}_2}$ . Der für die gleiche Membranfläche theoretisch maximale Abtrenngrad  $Ab_{\text{Modul,max,CO}_2}$  wird über die Simulationen in Aspen Plus<sup>®</sup> bestimmt, bei denen eine ideale Durchströmung des Membranmoduls angenommen wird. Das Verhältnis dieser beiden CO<sub>2</sub>-Abtrenngrade wird in der vorliegenden Arbeit gemäß Gl. 2-7 als Effizienz des Membranmoduls definiert. Diese wird im Folgenden Moduleffizienz genannt.

$$\eta_{\text{CO}_2\text{-Abtrennung,Modul}} = \frac{Ab_{\text{Modul,Strömung,CO}_2}}{Ab_{\text{Modul,max,CO}_2}} \quad \text{Gl. 2-7}$$

Der Prozessabtrenngrad wird zusammen mit der CO<sub>2</sub>-Reinheit im Produktstrom oft als Randbedingung der Prozessauslegung festgelegt, damit Abtrennprozesse bei gleicher Abtrennperformance beziehungsweise gleichem Trennergebnis verglichen werden. Wenn nicht anders angegeben, ist die CO<sub>2</sub>-Reinheit gleichbedeutend mit dem CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil des abgetrennten Stroms  $x_{\text{aus,Produktstrom,CO}_2}$ , der den gesamten Trennprozess zur Weiterverarbeitung bzw. Speicherung verlässt. Bei dieser Definition sind auch Änderungen des Stoffmengenanteils nach der Trennung im Membranmodul, zum Beispiel durch Kondensation und Abscheidung des permeierten Wasserdampfes, berücksichtigt.

Bei wirtschaftlichen Bewertungen ist der Kraftwerksprozess mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung mit jenem ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung zu vergleichen. Durch den zusätzlichen Energieverbrauch für die Abtrennung mindert sich die Nettoleistung, sodass sich der auf den erzeugten Strom bezogene CO<sub>2</sub>-Massenstrom nach der Entschwefelung erhöht. Dieser pro Kilowattstunde zusätzlich anfallende CO<sub>2</sub>-Massenstrom ist in Abbildung 2-2 mit Delta CO<sub>2</sub> gekennzeichnet. Die gegenüber dem Kraftwerksprozess ohne CCUS vermiedenen CO<sub>2</sub>-Emissionen ergeben sich somit aus dem abgetrennten CO<sub>2</sub>-Massenstrom abzüglich des Delta CO<sub>2</sub>, welcher erst durch die Abtrennung anfällt. Anders interpretiert ergeben sich die spezifischen vermiedenen CO<sub>2</sub>-Emissionen als Differenz der spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen ohne und mit CCUS.

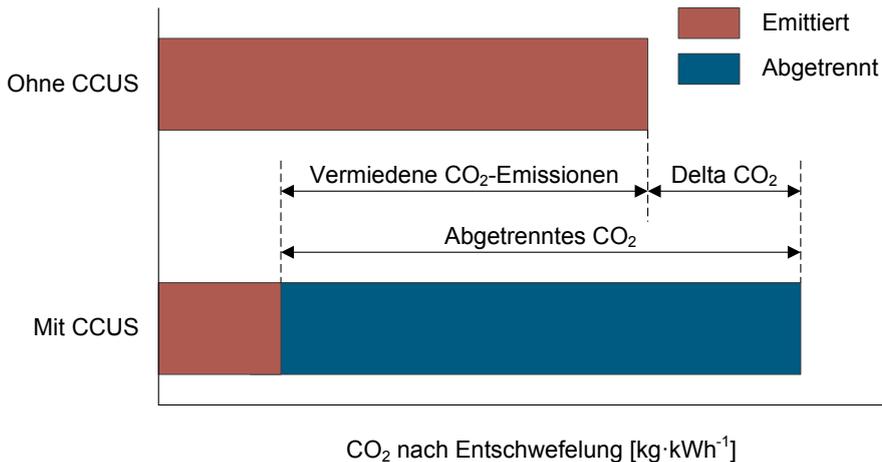


Abbildung 2-2: Schematische Darstellung des Unterschieds zwischen CO<sub>2</sub>-Vermeidung und CO<sub>2</sub>-Abtrennung in Anlehnung an [20]

Die zusätzlich gegenüber dem Kraftwerksprozess ohne CCUS anfallenden Kosten zur Vermeidung einer bestimmten Menge an CO<sub>2</sub>-Emissionen nennen sich CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten. Für einen ökonomischen Vergleich der Kraftwerksprozesse mit und ohne CCUS werden die spezifischen CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten je Tonne nicht emittiertes CO<sub>2</sub> berechnet. Für die Masse der vermiedenen CO<sub>2</sub>-Emissionen fallen im Falle ohne CCUS Kosten für den Erwerb von CO<sub>2</sub>-Zertifikaten, die jeweils zu der Emission einer Tonne CO<sub>2</sub> berechtigen, an. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidung mittels CCUS ist wirtschaftlich, wenn die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten kleiner als der CO<sub>2</sub>-Zertifikatpreis sind. Die Berechnungsmethode der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten wird in Kapitel 3.5.1 vorgestellt. Aus den in Abbildung 2-2 dargestellten Abhängigkeiten lässt sich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungsgrad  $VG_{CO_2}$  nach Gl. 2-8 ableiten. Er stellt eine Alternative zum CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad dar, die die Wirkungsgradverluste durch die Abtrennung berücksichtigt. Dabei werden die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen mit CCUS mit dem Nettowirkungsgrad des Kraftwerks ohne CCUS  $\eta_{el,RKW}$  und dem Wirkungsgradverlust durch die CO<sub>2</sub>-Abtrennung  $\Delta\eta_{CCUS}$  sowie dem Abtrennungsgrad aus den CO<sub>2</sub>-Emissionen ohne CCUS umgerechnet.

$$VG_{CO_2} \equiv \frac{\dot{m}_{CO_2, \text{ vermieden, spezifisch}}}{\dot{m}_{CO_2, \text{ produziert, spezifisch}}} = 1 - \left(1 - Ab_{\text{Prozess}, CO_2}\right) \cdot \frac{\eta_{el,RKW}}{\eta_{el,RKW} - \Delta\eta_{CCUS}} \quad \text{Gl. 2-8}$$

Ersatzweise werden folgende technische Bewertungskriterien für den Vergleich zweier Prozessvarianten bei der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung verwendet, die auch als Hilfsgröße zur Berechnung der Kosten dienen:

- Spezifischer Energieverbrauch der Kompressoren
- Wirkungsgradverlust  $\Delta\eta_{\text{CCUS}}$  gegenüber dem Kraftwerksprozess ohne CCUS
- Benötigte Fläche der Membranmodule und der Wärmeübertrager

Der spezifische Energieverbrauch der Kompressoren ist die notwendige Kompressorleistung bezogen auf den abgetrennten Massenstrom CO<sub>2</sub>. Hierbei muss berücksichtigt werden, dass in dem zugrunde gelegten Abtrennprozess ein Teil der technischen Leistung durch die Expander zurückgewonnen werden kann. Der Energieverbrauch spiegelt sich ebenfalls im Wirkungsgradverlust wider, welcher eine weitere Größe zum energetischen Vergleich der Kraftwerksprozesse mit CCUS untereinander darstellt. Zudem dienen die benötigten Membranflächen und Wärmeübertragerflächen als Maß für die Investitionssummen des Membranmoduls und der Wärmeübertrager, die direkt aus den Daten der Prozesssimulation abgelesen werden können. Ändern sich durch Variation der Modulgeometrie beziehungsweise der Eintrittsgeschwindigkeit des Feeds in das Modul sowohl der Volumenstrom je Modul als auch die Membranfläche je Modul, wird die spezifische Membranfläche als Bewertungskriterium herangezogen. Die spezifische Membranfläche ist die Membranfläche des Moduls bezogen auf den CO<sub>2</sub>-Massenstrom im Permeat des Moduls.

Weiterhin müssen Membranmaterial, das Material für das Modulgehäuse und die Materialien für die übrigen Anlagenkomponenten des Abtrennprozesses wie Kompressoren, Rohre und Wärmeübertrager so gewählt werden, dass eine mechanische, chemische und thermische Langzeitstabilität bei Kontakt mit Kraftwerksrauchgas gewährleistet ist.

### 2.3 Polyactive® als Gastrennmembran zur CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Membranverfahren zur industriellen Trennung von Gasgemischen haben sich in den letzten Jahrzehnten in der Prozessindustrie etabliert [21]. Die Membrantechnik ist einfach und flexibel einsetzbar und kommt im Abtrennprozess ohne Chemikalien aus. Weiterhin ist der Regelungsaufwand geringer als in klassischen Trennverfahren. Hauptanwendungsgebiete von Gastrennmembranen sind die Rückgewinnung von Wasserstoff aus Purgegasen, die Entfeuchtung von Gasströmen, die Separation oder Rückgewinnung organischer Komponenten in Gasströmen und die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Erdgas [21]. Ein weiteres Anwendungsfeld von Gastrennmembranen liegt in den verschiedenen Routen des CCUS.

Synthetisch hergestellte Membranen werden in technischen Prozessen als semipermeable Trennschicht zwischen zwei Fluidphasen zu deren räumlichen Trennung mit selektivem Stoffaustausch oder zur Anreicherung einzelner Komponenten in einer Fluidphase eingesetzt. In der Materialforschung werden Membranmaterialien maßgeschneidert für jede Kombination aus beteiligten Komponenten in den Fluidphasen und jede Trennaufgabe entwickelt. Dabei werden neben den für die spezielle Trennung optimierten Trenneigenschaften – also die in Kapitel 2.1 vorgestellte Permeabilität und die ideale Selektivität – auch Faktoren wie chemische, thermische und mechanische Beständigkeit im Anwendungsfall berücksichtigt.

Eine Klassifizierung der Membranen ist in Abbildung 2-3 dargestellt. Synthetische Membranmaterialien werden zunächst nach Aggregatzustand und gemäß der Unterscheidung zwischen organischen oder anorganischen Werkstoffen klassifiziert. Flüssige Membranen, die eine emulgierte oder in Poren festgehaltene Flüssigkeit als trennaktive Schicht nutzen,

ermöglichen eine effiziente Abtrennung aufgrund der hohen Diffusionskoeffizienten und der geringen benötigten Membranphase. Sie werden bisher jedoch nicht im industriellen Maßstab eingesetzt, da eine langzeitstabile Flüssigphase ohne Verdampfung oder Ausbluten der Membran bisher nicht reproduzierbar hergestellt werden kann [18, S. 65]. Bei festen Membranen werden sowohl organische als auch anorganische Materialien eingesetzt. Auch eine Kombination beider Materialklassen ist bei den sogenannten Mixed-Matrix-Membranen möglich. Unterschiedliche Synthesewege und Grundbausteine ermöglichen bei organischen Polymermembranen Materialien mit maßgeschneiderten Eigenschaften. Doch auch anorganische Materialien werden zunehmend erforscht, da sie thermisch und chemisch beständiger sind. Sie sind jedoch bisher nicht im industriellen Maßstab reproduzierbar herstellbar.

Hinsichtlich der Morphologie wird zwischen porösen und dichten Membranen und hinsichtlich der Membranstruktur zwischen homogenen und heterogenen Membranen unterschieden. Je nach Größe der abzutrennenden Komponenten beziehungsweise Partikel werden poröse Membranen mit unterschiedlichen Porendurchmessern eingesetzt. Die Selektion des Stofftransports durch poröse Membranen erfolgt anhand des Partikeldurchmessers, da kleine Partikel besser beziehungsweise schneller die Poren passieren. Bei dichten Membranen bestimmen Unterschiede in der Löslichkeit und Diffusionsgeschwindigkeit verschiedener Gaskomponenten die Trennwirkung.

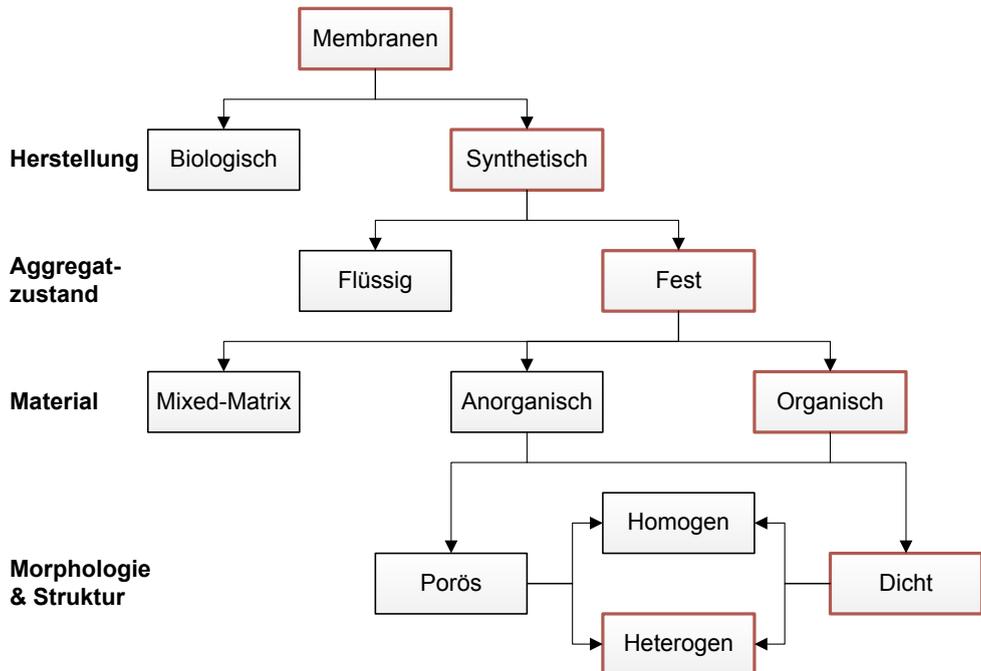


Abbildung 2-3: Klassifizierung von Membranen; rot umrandet sind die Klassifizierungselemente des in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten Membranmaterials; in Anlehnung an [18, S. 20]

Das zu behandelnde Rauchgas im Post-Combustion Capture besteht hauptsächlich aus Kohlendioxid und Stickstoff, sodass die Trennung dieser Komponenten durch die höhere

Permeationsrate des CO<sub>2</sub> gegenüber dem N<sub>2</sub> durch die Membran stattfindet. Um eine möglichst effiziente Aufbereitung des gesamten Kraftwerksrauchgases unter Einhaltung einer vorgegebenen CO<sub>2</sub>-Reinheit und eines CO<sub>2</sub>-Abtrenngrads zu gewährleisten, müssen die CO<sub>2</sub>-Permeabilität und die CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität des Membranmaterials möglichst hoch sein. In Abbildung 2-4 ist eine vorläufige Obergrenze für die Kombination aus CO<sub>2</sub>-Permeabilität und CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität dargestellt. Dieser sogenannte Robeson-Plot wurde aus bis 2008 veröffentlichten Daten für eine Vielzahl von organischen Polymermembranen abgeleitet [22]. Polymermembranen, die mit ihren Trenneigenschaften in der Nähe dieser Obergrenze liegen, sind beispielsweise Polaris™ und Polyactive®. In der Punktwolke des Robeson-Plots sind zusätzlich die Trenneigenschaften von Polyactive® für verschiedene Modifikationen der Polymerketten sowie die Trenneigenschaften von Polaris™ eingetragen. In der vorliegenden Arbeit werden die Membraneigenschaften von Polyactive® angenommen. Polyactive® wurde im Rahmen der Beteiligung an der Helmholtz-Allianz MEM-BRAIN ausgewählt. Der Projektpartner vom Helmholtz-Zentrum Geesthacht synthetisiert Membranen mit diesem Polymer als trennaktiver Schicht, sodass die Eigenschaften der Membran zugänglich sind.

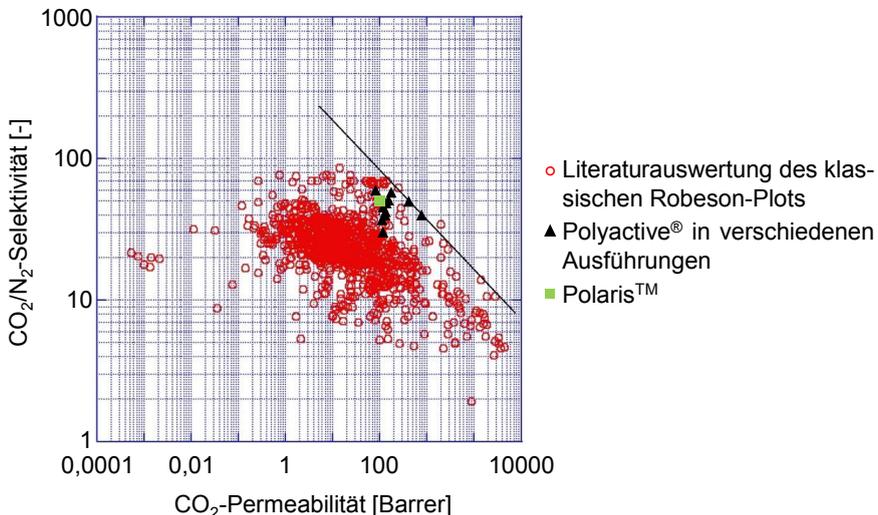


Abbildung 2-4: Robeson-Plot für die CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Trennung für gängige Polymermembranen in Anlehnung an [22]; rote Kreise: Literaturliteratur des klassischen Robeson-Plots [22], schwarze Dreiecke: Polyactive® mit verschiedenen Massenanteilen der PEO- und PBT-Blöcke sowie verschiedenen Blendmaterialien [23; 24; 25], grünes Viereck: Polaris™ mit einer Permeanz von 1000 GPU<sup>4</sup> und einer Membrandicke von 1000 Å [26; 27]

Polyactive® ist ein semikristallines, aus den Polymeren Polyethylenoxid (PEO) und Polybutylenterephthalat (PBT) bestehendes Multiblock-Copolymer [23; 28]. PEO begünstigt als gummiartiges, amorphes, hydrophiles Polymer die Diffusion des CO<sub>2</sub> durch Steigerung der Flexibilität. Die chemische Struktur von Polyactive® in Abbildung 2-5 zeigt die polaren Ethylenoxid-Gruppen, die Wechselwirkungen mit dem sauren, quadrupolaren CO<sub>2</sub> eingehen,

<sup>4</sup> 1 GPU = 1 Gas Permeation Unit = 10<sup>-6</sup> cm<sup>3</sup>(i.N.)·cm<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>·cmHg<sup>-1</sup> = 7,5·10<sup>-12</sup> m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>·Pa<sup>-1</sup>.

wodurch die CO<sub>2</sub>-Löslichkeit in der Polymermatrix gegenüber der Löslichkeit unpolarer Gase wie Stickstoff, Sauerstoff und Argon höher ist [29]. Somit besitzt es im Vergleich zu anderen Polymeren eine außerordentlich hohe CO<sub>2</sub>-Permeabilität von bis zu 750 Barrer bei gleichzeitig hoher CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität von bis zu 60, wie der Robeson-Plot in Abbildung 2-4 zeigt. Die mechanische und thermische Stabilität erhält das Copolymer durch das starre, kristalline, hydrophobe Polymer PBT [28]. Eine thermische Degradation von Polyactive® mit verschiedenen Verhältnissen von PEO zu PBT wurde experimentell ab ca. 330 °C nachgewiesen [23]. Somit ist das Polymer bei Temperaturen des Rauchgases nach der konventionellen Rauchgasbehandlung von ca. 50 bis 70 °C thermisch stabil [30]. Damit ist Polyactive® ein geeignetes Polymer zur Abtrennung des CO<sub>2</sub> aus Kraftwerksrauchgas. Daher werden die Eigenschaften von Polyactive® in der vorliegenden Arbeit bei der Modellierung verwendet.

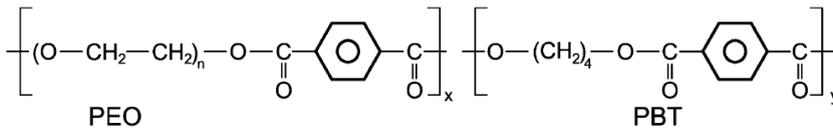


Abbildung 2-5: Schematische Darstellung der chemischen Struktur von Polyactive®; PEO: Polyethylenoxid; PBT: Polybutylenterephthalat [23]

Die Membran mit Polyactive® als trennaktiver Schicht besteht zusätzlich aus mehreren Stützsichten, um die trennaktive Schicht bei hohem Differenzdruck zwischen Feed und Permeat nicht zu beschädigen. Die grobporige Polyacrylnitril-Stützsicht ist mit dichtem, hochpermeablem Polydimethylsiloxan beschichtet, damit bei der Herstellung der Membran mittels Dip-Coating-Verfahren ein Eindringen der flüssigen Polymerlösung in die Poren der Polyacrylnitril-Schicht verhindert wird [24]. Die Polyacrylnitril-Schicht wird wiederum von einem nicht-gewebten Vlies beispielsweise aus Polyester gestützt. Dieser schichtweise Aufbau der Kompositmembran von dichten zu grobporigen Materialien gewährleistet eine gute Kraftübertragung ohne hohe Scherkräfte orthogonal zur Membranoberfläche. Die Stützsichten sind jedoch permeabler als Polyactive®, sodass die Transportvorgänge in diesen Stützsichten nicht geschwindigkeitsbestimmend sind. Die Transportwiderstände dieser Stützsichten werden bei der Modellierung in der vorliegenden Arbeit vernachlässigt.

Tabelle 2-1 ist zu entnehmen, dass die Permeanz für alle Komponenten mit steigender Temperatur zunimmt, während die Selektivität gegenüber CO<sub>2</sub> mit steigender Temperatur abnimmt. Für die Berechnung des Abtrennprozesses wird aus materialtechnischen Gründen eine Betriebstemperatur von 25 °C angenommen. Die genaue Begründung für diese Wahl findet sich in Kapitel 2.5.3. Die in den Prozesssimulationen verwendeten Permeanzen und Selektivitäten sind in Tabelle 2-1 fett hervorgehoben. Während in [31] eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 3,4 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> bei 25 °C angegeben ist, wird in der vorliegenden Arbeit mit einem konservativeren Wert der CO<sub>2</sub>-Permeanz von 3 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> gerechnet, wobei sich die Selektivitäten gegenüber der anderen Komponenten nicht ändern. Diese Permeanz wird auch in [30] für Polyactive® bei 25 °C verwendet, wobei dort ein vernachlässigbarer Einfluss der Temperatur auf die Permeanz angenommen wird und ermöglicht somit einen besseren Vergleich der Prozesssimulationen mit Ergebnissen ohne Druckverlust. Die Permeanz von Wasserdampf ist zehn Mal höher als die CO<sub>2</sub>-Permeanz, sodass das Wasser schnell durch die Membran permeiert und sich im Permeat anreichert. Die CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität liegt bei dieser Temperatur bei 50.

Tabelle 2-1: Temperaturabhängigkeit der Permeanzen und der Selektivitäten gegenüber CO<sub>2</sub> für Polyactive®; Daten aus [30; 31; 32]

Temperatur [°C]	Permeanz [m <sup>3</sup> (i.N.)·m <sup>-2</sup> ·h <sup>-1</sup> ·bar <sup>-1</sup> ]				Selektivität gegenüber CO <sub>2</sub>			
	20	25	30	50	20	25	30	50
CO <sub>2</sub>	2,7	<b>3</b>	4,3	5,7	1	<b>1</b>	1	1
N <sub>2</sub>	0,044	<b>0,06</b>	0,12	0,2	61	<b>50</b>	36	28,5
H <sub>2</sub> O	-	<b>30</b>	43,4	-	-	<b>0,1</b>	0,1	-
O <sub>2</sub> *	0,123	<b>0,168</b>	0,336	0,56	22	<b>18</b>	13	10
Ar**	0,123	<b>0,168</b>	0,336	0,56	22	<b>18</b>	13	10

\* konstante O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität von 2,8 [31] für den gesamten Temperaturbereich angenommen

\*\* gleiche Permeanz für Argon wie für Sauerstoff angenommen

## 2.4 Membranmodule

Damit Membranen in industriellen Prozessen technisch handhabbar sind, werden sie in Modulen angeordnet [18, S. 151]. Die Wahl des Membranmoduls und die Position des Permeat-abflusses entscheiden über die interne Strömungsführung und die Betriebsweise des Moduls. Eine Übersicht über Strömungsführungen und Betriebsweisen gibt Abbildung 2-6. Analog zur Strömungsführung in Wärmeübertragern wird zwischen Gegenstrom, Gleichstrom und Kreuzstrom unterschieden. Zusätzlich ist in manchen Fällen die Annahme des freien Permeatabflusses oder einer vollständigen Vermischung innerhalb der Fluidphasen zutreffend. Diese beiden Annahmen ermöglichen eine vereinfachte Modellierung der Permeation, sodass analytische Lösungen für einfache Stoffsysteme angegeben werden können.

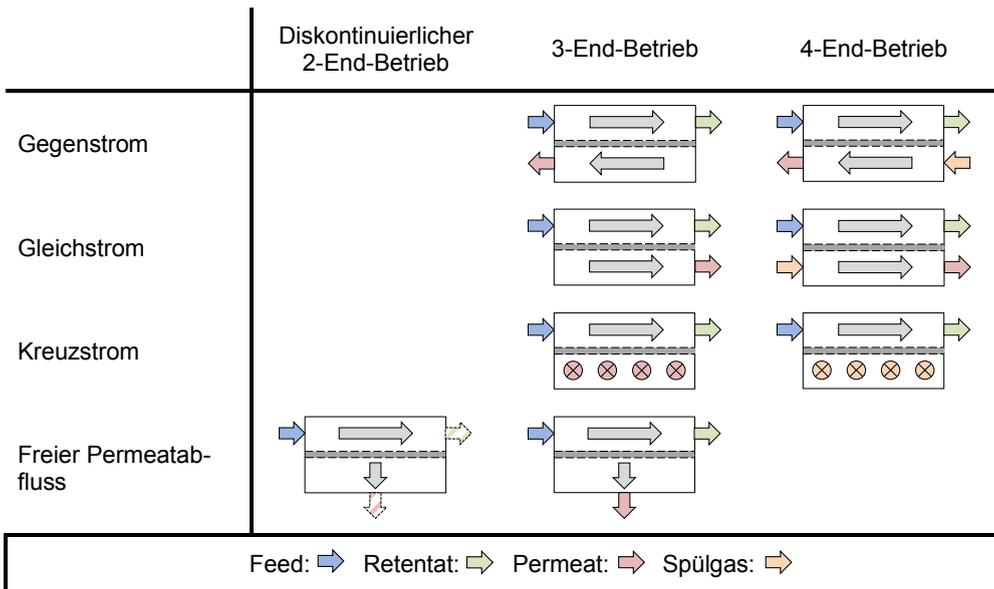


Abbildung 2-6: Allgemeine Strömungsführungen und Betriebsweisen bei Membranmodulen; die durch die schraffierten Pfeile gekennzeichneten Ablaufkanäle werden nur zeitweise geöffnet; in Anlehnung an [18, S. 152]

In jedem Fall strömt ein Feed in das Membranmodul ein und ein Teil des Feeds permeiert durch die Membranen. Der zurückgehaltene Teil – das Retentat – verlässt das Membranmodul meist kontinuierlich oder in seltenen Fällen diskontinuierlich. Letztere Betriebsweise nennt sich Dead-End- oder 2-End-Betrieb und wird zum Beispiel beim Filtrieren von Kaffee angewandt. Bei Permeabilitätsmessungen mittels der Druckanstiegsmethode kann auch der Permeataustritt zeitweise geschlossen bleiben. Beide diskontinuierlichen Betriebsweisen sind in Abbildung 2-6 durch die schraffierten Pfeile angedeutet. Im 3-End-Betrieb gibt es im Permeat keinen Eintritt, sondern nur einen Austritt. Beim 4-End-Betrieb tritt ein Spülstrom in den Permeatkanal ein, verringert damit den Partialdruck der bevorzugt permeierenden Komponente im Permeat und erhöht somit deren Triebkraft. Ist das Permeat der Produktstrom, dann ist der Betrieb mit Spülstrom allerdings nur dann sinnvoll, wenn die Stoffe des Spülgases nicht das Permeat verunreinigen bzw. leicht von der bevorzugt permeierenden Komponente abzutrennen sind. Ist das Retentat der Produktstrom, kann als Spülgas prinzipiell jedes Gas verwendet werden, welches die Membran nicht chemisch angreift.

Da in der Gaspermeation die Partialdruckdifferenz die Triebkraft darstellt, sind sowohl die Stoffmengenanteile als auch der Druck im Feed und Permeat triebkraftbestimmend. Aufgrund der zum Teil wesentlichen Konzentrationsänderung im Feed und des nicht vernachlässigbaren Einflusses von Konzentration und Druck an der Membranoberfläche im Permeat hat gerade in der Gaspermeation der Richtungsbezug zwischen Feed- und Permeatstrom Einfluss auf die Abtrennleistung [18, S. 153]. Der Druck fällt sowohl in den Feed- als auch in den Permeatkanälen in Strömungsrichtung ab, sodass sich im Gleichstrombetrieb ein anderes Profil des örtlichen Druckverhältnisse entlang der Modullänge ausbildet als im Gegenstrombetrieb. Je nach Kanallänge kann dadurch das durchschnittliche örtliche Druckverhältnis im Gleichstrombetrieb höher sein als im Gegenstrombetrieb. Es ist also je nach Konzentrationsprofil im Feed und Permeat nicht – wie bei Wärmeübertragern [33] – auszuschließen, dass ein Gleichstrombetrieb vorteilhaft ist. Für die in der vorliegenden Arbeit zugrunde liegende Trennaufgabe wird die Vorteilhaftigkeit des Gegenstrombetriebs in Kapitel 5.5 analysiert. In Extremfällen reduziert auch hier der Betrieb im Gleichstrom die benötigte Membranfläche.

### 2.4.1 Modulbauformen

Allgemein wird zwischen Modulen mit Schlauch- oder Flachmembranen unterschieden, wie in Abbildung 2-7 ersichtlich. Schlauchmembranen sind röhrenförmige Membranen, die feedseitig meist innen angeströmt werden. Dabei liegt die trennaktive Schicht ebenfalls innen und nur in seltenen Fällen außen. Bei partikelhaltigen Feedströmen senkt eine Außenanströmung mit außenliegender trennaktiver Schicht die Verblockungsneigung [18, S. 166]. Je nach Durchmesser einer einzelnen Membranröhre wird zwischen Hohlfaser-, Kapillar- oder Rohrmodulen, die in Abbildung 2-8 a) bis c) abgebildet sind, unterschieden. Hohlfasermodule enthalten Röhren mit einem Außendurchmesser von 80 µm bis 400 µm, Kapillarmembranen haben einen Außendurchmesser von 0,4 mm bis 6 mm und Rohrmodule bestehen aus mehreren Rohrmembranen mit einem Außendurchmesser von 6 mm bis 25 mm. Feedraum und Permeatraum werden im Hohlfaser- und Kapillarmodul gegeneinander abgedichtet, indem die parallel angeordneten Membranschläuche an beiden Seiten in Harz eingebettet werden [18, S. 162]. Bei Flachmembranen werden zwei flächige Membranen so miteinander kombiniert, dass ein Strömungskanal für Feed und Permeat geometrisch definiert wird und die Permeatseite gegenüber der Feedseite abgedichtet ist.

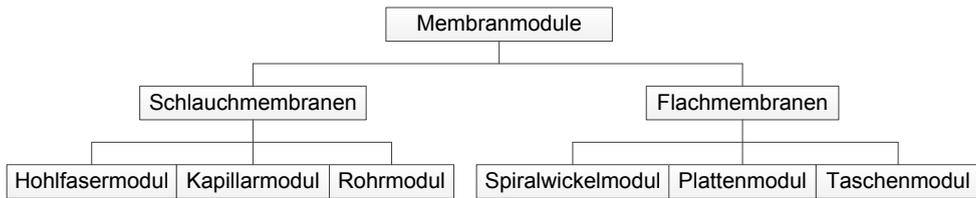


Abbildung 2-7: Übersicht über Modulbauformen in Anlehnung an [18, S. 156]

Module mit schlauchförmigen Membranen können prinzipiell im Gegen-, Gleich- oder Kreuzstrom betrieben werden. Für die meisten Anwendungen ist jedoch der Betrieb im Gegenstrom vorteilhaft. Bei feedseitig innen angeströmten Membranröhren werden dazu die Anschlussrohre des Permeats so am Modul positioniert, dass das Permeat entlang der Außenmängel der Membranröhren dem Feed entgegenströmt. Ohne zusätzliche Strömungsführung werden Spiralwickelmodule im Kreuzstrom betrieben, da der Feed parallel zum Permeatrohr und das Permeat spiralförmig tangential zum Permeatrohr strömen. In Taschenmodulen strömt das Permeat innerhalb einer Tasche radial zum mittigen Permeatrohr. Der Feed hingegen strömt innerhalb eines durch die Umlenkplatten definierten Kompartiments – bestehend aus jeweils mehreren Membrantaschen – hauptsächlich in eine Richtung senkrecht zur Mittelachse, sodass eine Mischform aus Gegen-, Gleich- und Kreuzstrom entsteht. Eine analoge Strömungsführung ist in Plattenmodulen üblich. Durch Verschiebung der Lage des Permeatrohrs kann diese Strömungsführung beeinflusst werden.

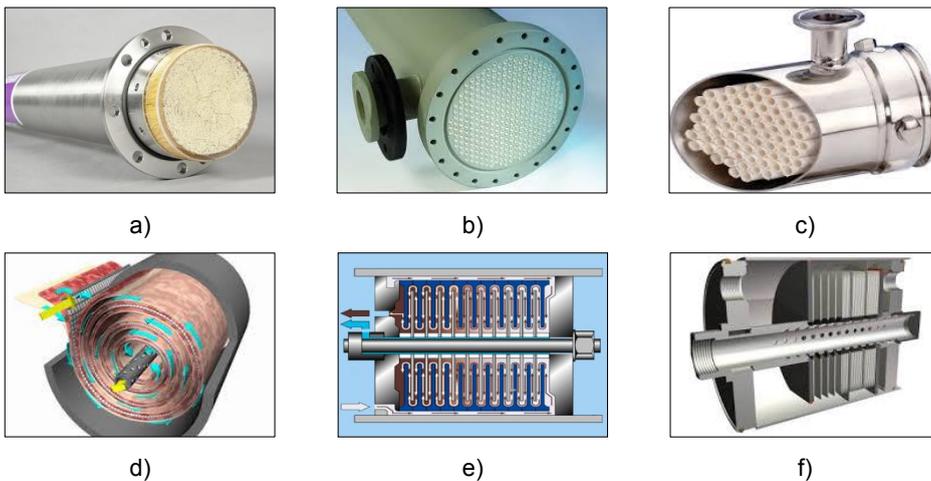


Abbildung 2-8: Schlauchmembranen: a) Hohlfasermodule, b) Kapillarmodule, c) Rohrmodule; Flachmembranen: d) Spiralwickelmodule, e) Plattenmodule, f) Taschenmodule [34; 35; 36; 37; 38; 39]

Die ursprüngliche Modulbauform für Flachmembranen ist das Plattenmodule. Dieses ist aus hohlen beziehungsweise perforierten Feed- und Permeatplatten mit auf den Feedplatten liegenden Membranschichten aufgebaut, wobei der Feed im Parallelbetrieb durch die Feedplatten strömt [40, S. 516]. Um den Permeat- und Feedraum gegeneinander abzudichten, sind

bei dieser Modulbauform viele Einzeldichtungen notwendig. Das Disc-Tube-Modul aus Abbildung 2-8 e) ähnelt den heutigen Taschenmodulen, da bei dieser Anordnung die Platten die Strömung mäanderförmig entlang der Membranoberfläche leiten. Die Permeatplatten sind von innen hohl und leiten das Permeat radial in Richtung Permeatrohr. In neueren Plattenmodulen sind die Platten, die die Membran abstützen, durch Spacer ersetzt und es werden Umlenkplatten zur Strömungsführung eingesetzt.

Bei Spiralwickel- und Taschenmodulen sind die zwei Flachmembranen außen miteinander verschweißt und mittels Permeatspacer auf Abstand gehalten. Zwischen zwei so geformten Membrantaschen definieren Spacer den Feedkanal. Im Falle des Spiralwickelmoduls werden mehrere Taschen und Feedspacer um ein zentrales Permeatrohr gewickelt, zu dem das Permeat spiralförmig strömt, wie in Abbildung 2-8 d) dargestellt. Die Membrantasche ist am Anschluss zum Permeatrohr offen, mit diesem verklebt und zur Feedseite hin abgedichtet [40, S. 516f.]. Der Feed strömt parallel zur Achse des Permeatrohrs durch das Modul. Beim Taschenmodul befindet sich das Permeatrohr in Bohrungen durch die abwechselnd gestapelten Taschen und Feedspacer. Im Falle des in Abbildung 2-8 f) dargestellten Taschenmoduls befindet sich das Permeatrohr auf der Mittelachse des zylinderförmigen Moduls, so dass das Permeat in den Membrantaschen radial in Richtung Rohr strömt. Die Feedströmung wird durch Umlenkplatten mäanderförmig durch das Modul gelenkt, um eine möglichst gute Überströmung der Membrantaschen zu gewährleisten. Dabei werden mehrere Membrantaschen zwischen zwei Umlenkplatten angeordnet und bilden ein Kompartiment. Dies hat den Vorteil, dass durch die Anzahl der Membrantaschen pro Kompartiment der Gesamtquerschnitt der Feedkanäle variiert werden kann. Somit lässt sich bei abnehmendem Feedstrom infolge der Permeation eines Teilstroms eine definierte Überströmungsgeschwindigkeit einstellen [18, S. 171].

Die Modulbauform wird individuell für jeden Trennprozess nach folgenden Kriterien ausgewählt [18, S. 155]:

- Packungsdichte
- Strömungsverteilung
- Druckverlust
- Feststoffbeladbarkeit bzw. Konzentrationspolarisation
- Reinigungsmöglichkeit und Membranwechsel
- Hersteaufwand und -kosten
- chemische, mechanische und thermische Stabilität

Die sich aus diesen Kriterien ergebenden Anforderungen widersprechen sich teilweise, so dass für die jeweilige Anwendung ein Kompromiss gefunden werden muss, der die Herstellbarkeit, die Gesamtkosten und den Wartungsaufwand berücksichtigt. Charakteristika, die ungeachtet einer spezifischen Anwendung für das jeweilige Membranmodul gelten, sind in Tabelle 2-2 zusammengefasst. Im Folgenden werden ausschließlich die Vor- und Nachteile der Modulbauformen hinsichtlich der Gastrennung diskutiert.

Um den Bauraum bei großtechnischen Trennaufgaben möglichst gering zu halten, sind Module mit einer hohen Packungsdichte – welche die Membranfläche pro verbautem Volumen angibt – vorteilhaft. Daher werden in der Praxis oft Hohlfaser- oder Spiralwickelmodule zur Gastrennung eingesetzt. Mit der hohen Packungsdichte geht allerdings bei beiden Modulformen ein hoher Druckverlust in den Hohlfasern beziehungsweise im spiralförmigen Permeatstrom einher. Bei der Behandlung von Gasströmen mit hoher Feststoffbeladung nimmt

zudem bei hoher Packungsdichte die Verblockungsneigung zu. Rohrmodule werden bei der Gastrennung nicht eingesetzt, da sie eine zu geringe Packungsdichte haben. Zwar sind der Druckverlust und die Verblockungsneigung in den Röhren gering, allerdings sind diese Vorteile auch im Taschenmodul gegeben, welches mit einer höheren Packungsdichte gebaut werden kann. Konzentrationspolarisation tritt vor allem in Modulen mit hohem Stufenschnitt auf und wird gesondert in Kapitel 2.4.2 behandelt.

Tabelle 2-2: Vergleich der Modulbauformen [18; 19; 41; 42; 43]

Modulbauform		Schlauchmembranen			Flachmembranen		
		Hohlfasermodul	Kapillarmodul	Rohrmodul	Spiralwickelmodul	Plattenmodul	Taschenmodul
Packungsdichte	$\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$	< 10.000	< 1000	< 200	< 1000	30-400	200-500
Druckverlust	-	Hoch in Fasern	Moderat	Gering, aber Umlenkungen	Hoch, langer Permeatweg	Moderat, Umlenkung	Moderat, Umlenkung
Feststoffbeladbarkeit	-	Gering, Verblockung	Mittel	Hoch	Gering	Hoch	Mittel bis hoch
Reinigungsmöglichkeit	-	Chemisch, Rückspülung, Modulwechsel	Chemisch, Rückspülung, Modulwechsel	Gut	Schlecht	Mittel	Mittel
Herstellung	-	Kostengünstig	Kostengünstig	Ggf. hoher Montageaufwand	Einfach, kostengünstig	Dichtung aufwendig	Einfach
Fertigungskosten	$\text{€} \cdot \text{m}^{-2}$	2-8* (2010)	15-35** (2005)	40-160*** (2004)	8-37* (2010)	40-150* (2010)	40-150* (2010)

\* Umrechnung der Werte aus [19] mit einem Wechselkurs von  $1,3435 \text{ US\$}_{2010} \cdot \text{€}_{2010}^{-1}$  [44]

\*\* Umrechnung der Werte aus [42] mit einem Wechselkurs von  $1,7147 \text{ A\$}_{2005} \cdot \text{€}_{2005}^{-1}$  [45]

\*\*\* Umrechnung der Werte aus [41, S. 152] mit einem Wechselkurs von  $1,2439 \text{ US\$}_{2004} \cdot \text{€}_{2004}^{-1}$  [44]

In Taschen- und Plattenmodulen können einzelne Membraneinheiten – Taschen oder Platten – ausgetauscht werden, sodass die Instandhaltung erleichtert wird und kostengünstiger ist. Hohlfaser- oder Kapillarmodule lassen zwar eine Rückspülung oder chemische Reinigung zu, müssen bei größeren Defekten aufgrund der Verklebung der Membranschläuche jedoch vollständig ersetzt werden. Hohlfasermembranen beziehungsweise deren Stützschiicht werden vorrangig über Phaseninversion und Extrusion hergestellt, sodass die Membranmaterialien für diese Bearbeitungsschritte geeignet sein müssen. Hochleistungsmembranen aus gummiartigen Polymeren sind beispielsweise nur schwer in Hohlfaserform herstellbar [41, S. 154]. Zur Herstellung der Membrantaschen der Spiralwickel- und Taschenmodule müssen die Membranmaterialien thermisch verschweißbar sein. Dagegen werden bei Plattenmodulen die nicht verklebten Membranschichten nur über die Dichtungen oder die Spacer auf den Platten fixiert. Die aufwendige Dichtung der Plattenmodule erschwert deren Herstellung.

Aufgrund des schlichten Aufbaus, der einfachen Fertigung und der hohen Packungsdichte der Hohlfasermodule liegen die Herstellungskosten pro verbautem Quadratmeter Membranfläche bei lediglich 2 bis 8 €<sub>2010</sub> m<sup>-2</sup> [19]. Allerdings muss für jede Anwendung eine Anlage zur Herstellung der Hohlfasern entwickelt werden, sodass sie nur für Anwendungen mit hohem Gesamtvolumenstrom ökonomisch einsetzbar sind [41, S. 152]. Zudem ist aufgrund der hohen Verblockungsgefahr die Vorbehandlung des Feedstroms kostenintensiver. Mit steigendem Durchmesser des Membranschlauchs steigen auch die auf die Membranfläche bezogenen Herstellungskosten. Die Kosten von Modulen mit Flachmembranen sind höher und liegen bei 8 bis 37 €<sub>2010</sub> m<sup>-2</sup> für Spiralwickelmodule und bei 40 bis 150 €<sub>2010</sub> m<sup>-2</sup> für Platten- oder Taschenmodule [19]. Bei den Herstellungskosten der Flachmembranen spielt auch der Verschnitt – also der hergestellte aber nicht verbaute Teil der Flachmembran – eine Rolle. Die Flachmembranen werden meist über ein Dip-Coating-Verfahren produziert, wobei die aktive Trennschicht auf ein Vlies – welches als lange Bahn aufgerollt ist – aufgetragen wird. Die beschichtete lange Bahn wird auf die Taschen- bzw. Plattenform zugeschnitten, sodass zum Teil bis zu 28 % der hergestellten Membranfläche Verschnitt sind. Zusätzlich verringert sich die nutzbare Membranfläche wegen der Abdeckung durch Dichtungen und wegen der Verklebung der Membranen zu einer Tasche.

Derzeit existieren keine Hohlfasermembranen, deren Permeanz und CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität an der Obergrenze des Robeson-Plot aus Abbildung 2-4 liegen und die reproduzierbar in großen Mengen hergestellt werden können [34]. Vor allem die Polymermembran mit Polyactive® als aktiver Trennschicht, die vom Helmholtz-Zentrum Geesthacht gefertigt wird, ist nur als Flachmembran erhältlich. Die Nutzung des Plattenmoduls beschränkt sich auf Anwendungen mit hoher Verblockungsneigung beziehungsweise hohem Foulingpotenzial, die die niedrige Packungsdichte dieser Modulbauform rechtfertigen. Somit kommen für das membranbasierte Post-Combustion Capture mit Flachmembranen nur Taschenmodule und Spiralwickelmodule in Frage. Nachteil dieser Modulformen in ihrer bisherigen Ausführung ist die Strömungsführung innerhalb des Moduls. Beispielsweise wird das Taschenmodul aus Abbildung 2-8 f) so durchströmt, dass der Feed die Membrantasche in eine Richtung überströmt und das Permeat radial in Richtung des mittigen Permeatrohrs strömt. Daher ergibt sich dort eine Mischung aus Kreuzstrom, Gleichstrom und Gegenstrom. Spiralwickelmodule werden standardmäßig im Kreuzstrom betrieben. Durch Einbauten, die die Feedströmung in dem Spiralwickelmodul leiten, kann teilweise ein Gegenstrombetrieb erreicht werden [46]. Gegenstrombetrieb ist für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas die generell bevorzugte Strömungsführung [15]. Daher wurde am Helmholtz-Zentrum Geesthacht ein Taschenmodul entworfen, welches im Gegenstrom betrieben werden kann [31]. Dieser Entwurf, welcher in Kapitel 4.1.1 näher erläutert wird, ist Grundlage der vorliegenden Arbeit.

### 2.4.2 Einfluss von Spacern auf die Triebkraft

In Membranmodulen mit Flachmembranen werden Abstandhalter zwischen zwei Membranflächen positioniert, damit die Membranflächen nicht direkt aufeinander liegen und die Strömung durch den Kanal passieren kann [47]. Diese Einheiten werden sowohl in den Feed- als auch in den Permeatkanälen eingesetzt und heißen Spacer. Im Gegenstrommodul ist jeder Feedkanal und das Innenvolumen jeder Membrantasche mit Spacern belegt. Die bei der Durchströmung entstehende Verwirbelung beeinflusst die Triebkraft der Permeation. Dieser Einfluss von Spacern auf die Triebkraft wird im folgenden Kapitel beschrieben.

## Spacer

Relevante Geometriegrößen von nicht-gewebten und gewebten Spacern sind in Abbildung 2-9 dargestellt. Die meisten Spacer sind aus zwei Lagen von Filamenten mit Durchmesser  $d_F$  aufgebaut, wobei Filamente gleicher Orientierung um den Abstand  $l_F$  voneinander entfernt sind. Filamente der zweiten Lage haben eine um den Winkel  $\alpha$  geänderte Orientierung. Bei diesen netzförmigen Spacern wird zwischen nicht-gewebten und gewebten Spacern unterschieden, je nachdem ob die Filamente gleicher Orientierung die Ebene zwischen zwei kreuzenden Filamenten ändert oder nicht. Der Winkel zwischen der Hauptströmungsrichtung und den Filamenten  $\beta$  ist eine weitere charakteristische Größe eines eingebauten Spacers und beeinflusst die Auswirkungen des Spacers auf die Strömung. Ist die Kanalhöhe  $h_{\text{Kanal}}$  kleiner als der doppelte Filamentdurchmesser, sind die sich kreuzenden Filamente an ihren Berührungspunkten zu einem gewissen Grad miteinander verschmolzen. Sollen Kanalhöhen größer als der doppelte Filamentdurchmesser realisiert werden, werden mehrere Spacer übereinander geschichtet. Damit ist die Kanalhöhe unabhängig vom Filamentdurchmesser. Die Anzahl der Spacerschichten wird in der vorliegenden Arbeit mit  $N_{\text{Spacer}}$  abgekürzt.

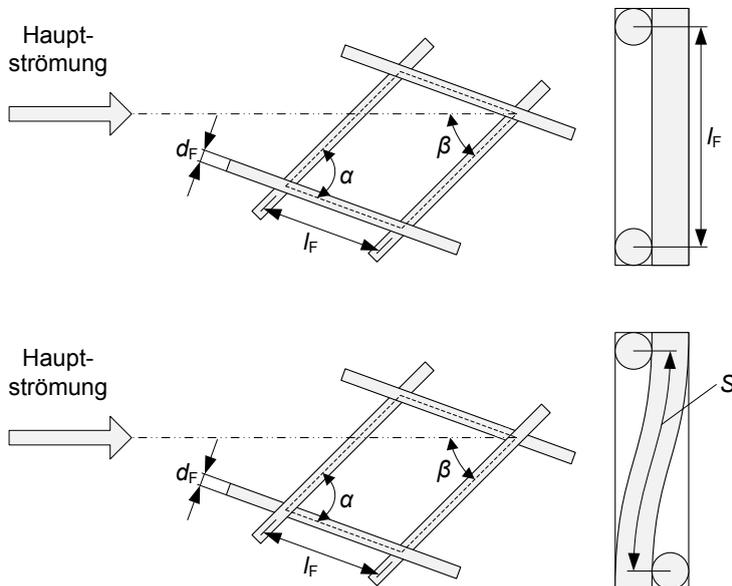


Abbildung 2-9: Geometriegrößen von nicht-gewebten (oben) und gewebten (unten) Spacern; in Anlehnung an [48]

Aus den genannten Geometriegrößen werden zur Beschreibung der Geometrie Spacergefüllter Kanäle zwei Kenngrößen berechnet – die Porosität und der hydraulische Durchmesser. Während die Porosität zur Umrechnung zwischen Leerkanalgeschwindigkeit und tatsächlicher physikalischer Geschwindigkeit genutzt wird, geht der hydraulische Durchmesser in die Druckverlustberechnung ein.

Die Porosität  $\varepsilon$  ist definiert als das Verhältnis von leerem Fluidraum zum gesamten Kanalvolumen und wird für nicht-gewebte Spacer nach Gl. 2-9 und für gewebte Spacer nach Gl. 2-10 bestimmt. Dabei wird angenommen, dass die Filamente unterschiedlicher Orientierung

rechtwinklig zueinander stehen, also  $\alpha = 90^\circ$  gilt. Bilanziert wird das Spacer-belegte Volumen und das Gesamtvolumen für eine sich wiederholende Einheitszelle, die in Abbildung 2-9 durch die fein gestrichelte Linie abgegrenzt ist.

$$\varepsilon = 1 - \frac{\pi \cdot d_F^2}{2 \cdot h_{Sp} \cdot l_F} \quad \text{Nicht-gewebter Spacer} \quad \text{Gl. 2-9}$$

$$\varepsilon = 1 - \frac{\pi \cdot d_F^2}{2 \cdot h_{Sp} \cdot l_F} \cdot \frac{S}{l_F} \quad \text{Gewebter Spacer} \quad \text{Gl. 2-10}$$

Der hydraulische Durchmesser  $d_h$  ist allgemein über das Verhältnis von durchströmter Fläche zu benetztem Umfang definiert. Diese Definition wird für komplexe durchströmte Querschnittsflächen angewandt, sodass sie den gleichen Druckverlust pro durchströmte Länge aufweisen wie ein mit der gleichen mittleren Strömungsgeschwindigkeit durchströmtes Rohr, dessen Durchmesser dem hydraulischen Durchmesser entspricht. Er dient damit als charakteristisches Längenmaß bei der Berechnung des Druckverlustes beliebiger durchströmter Querschnittsflächen. Bei Spacer-gefüllten Kanälen wird der hydraulische Durchmesser in analoger Weise über das Verhältnis von freiem Volumen und benetzter Oberfläche hergeleitet [49, S. 301]. Es ergeben sich die Berechnungsformeln gemäß Gl. 2-11 für einen nicht-gewebten Spacer und Gl. 2-12 für einen gewebten Spacer.

$$d_h = \frac{4 \cdot V_{\text{frei}}}{O_{\text{benetzt}}} = \frac{4 \cdot \left( l_F^2 \cdot h_{\text{Kanal}} - 2 \cdot \frac{\pi}{4} \cdot d_F^2 \cdot l_F \cdot N_{\text{Spacer}} \right)}{\left( 2 \cdot l_F^2 + 2 \cdot \pi \cdot d_F \cdot l_F \cdot N_{\text{Spacer}} \right)} \quad \text{Nicht-gewebter Spacer} \quad \text{Gl. 2-11}$$

$$d_h = \frac{4 \cdot V_{\text{frei}}}{O_{\text{benetzt}}} = \frac{4 \cdot \left( l_F^2 \cdot h_{\text{Kanal}} - 2 \cdot \frac{\pi}{4} \cdot d_F^2 \cdot S \cdot N_{\text{Spacer}} \right)}{\left( 2 \cdot l_F^2 + 2 \cdot \pi \cdot d_F \cdot S \cdot N_{\text{Spacer}} \right)} \quad \text{Gewebter Spacer} \quad \text{Gl. 2-12}$$

Neben der Funktion als Abstandhalter sind Spacer ein Strömungshindernis und bewirken damit eine kontinuierliche Verwirbelung beziehungsweise Umlenkung der Strömung sowie eine Destabilisierung der Konzentrationsgrenzschicht. Sie werden daher auch Turbulenzpromotoren genannt [50]. Spacer beeinflussen die Triebkraft sowohl in positiver Weise aufgrund der besseren Vermischung der Gasphase und damit der Verminderung der Konzentrationspolarisation als auch in negativer Weise aufgrund des erhöhten Druckverlustes. Diese Effekte werden in den folgenden Abschnitten beschrieben. In der Regel überwiegen jedoch die positiven Effekte, sodass der Einsatz aus wirtschaftlicher Sicht sinnvoll ist [47].

### Konzentrationspolarisation

Die Stoffströme innerhalb der Konzentrationsgrenzschicht sind in Abbildung 2-10 dargestellt. Der Transport der durch die Membran permeierenden Komponenten zur Membranoberfläche innerhalb der laminaren Grenzschicht erfolgt konvektiv und diffusiv und ist hauptsächlich orthogonal zur Hauptströmung gerichtet [18, S. 118f.]. Dabei entspricht die Zusammensetzung des konvektiven Antransports  $\dot{n}_K''$  der lokalen Zusammensetzung des Feeds  $x(z)$ , während die Zusammensetzung des Permeationsstroms  $\dot{n}_M''$  durch die Selektivität der Membran und die Triebkraft der Komponenten bestimmt wird. Die Differenz der beiden Ströme wird durch Diffusionsströme  $\dot{n}_D''$  ausgeglichen. Stoff  $i$  steht in Abbildung 2-10 für die bevorzugt permeierende und Stoff  $j$  für die zurückgehaltene Komponente. Aufgrund der selektiven Permeation reichert sich die langsamer permeierende Komponente auf der Feedseite an der Membranoberfläche an. Dies sorgt für einen höheren Stoffmengenanteil an der Membran  $x_{M,j}$

dieser Komponente im Vergleich zum Stoffmengenanteil in der Hauptströmung  $x_{B,j}$ . Der Stoffmengenanteil der bevorzugt permeierenden Komponente an der Membranoberfläche  $x_{M,j}$  ist geringer als in der Hauptströmung  $x_{B,j}$ . Somit bilden sich Konzentrationsgradienten orthogonal zur Membranoberfläche aus, die für den diffusiven Strom verantwortlich sind. Dieser Effekt wird Konzentrationspolarisation genannt.

Durch die Konzentrationserhöhung der zurückgehaltenen Komponente an der Membranoberfläche erhöht sich die Triebkraft dieser Komponente und gleichzeitig verringert sich die Triebkraft der bevorzugt permeierenden Komponente. Wenn die bevorzugt permeierende Komponente die auf der Permeatseite erwünschte Komponente ist, ist eine Minderung von deren Triebkraft unerwünscht. Sowohl die Prozessselektivität – gebildet mit den Stoffmengenanteilen an der Membranoberfläche – als auch der Abtrenngrad von Stoff  $i$  – im vorliegenden Fall  $\text{CO}_2$  – nehmen ab. Eine abnehmende Prozessselektivität bedeutet, dass sich die Qualität des Produktstroms – in diesem Fall die  $\text{CO}_2$ -Reinheit des Permeats – verschlechtert.

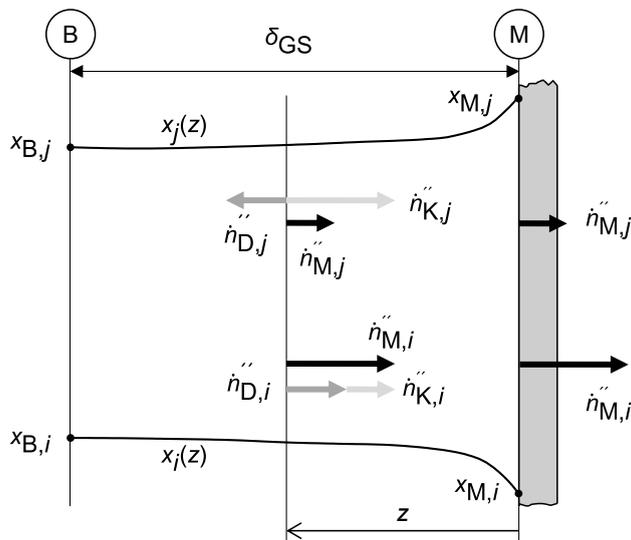


Abbildung 2-10: Profile der Stoffmengenanteile und membranorthogonale, konvektive und diffusive Stoffströme der Komponenten  $i$  und  $j$  in der laminaren Konzentrationsgrenzschicht der Feedseite; in Anlehnung an [18, S. 119]

Eine verringerte Konzentrationspolarisation und damit ein erhöhter Stoffübergangskoeffizient an der Feedseite der Membran ergeben sich durch folgende Maßnahmen [18, S. 142]:

- Einbauen in den Feedkanal wie zum Beispiel Spacer oder Mischer
- Erhöhung oder Pulsation der Überströmungsgeschwindigkeit
- Bewegung der Membran durch Vibration oder Rotation
- Erzeugung einer Mehrphasenströmung.

Als Strömungshindernis bewirken Spacer eine kontinuierliche Verwirbelung und Umlenkung der Strömung. Die damit einhergehende Destabilisierung der Konzentrationsgrenzschicht verringert die Konzentrationspolarisation, da die Grenzschicht sich ständig erneuert und somit die Konzentrationsgrenzschicht  $\delta_{GS}$  im Durchschnitt kleiner ist.

Die Triebkraft der Permeation durch die Membran wird mit dem Stoffmengenanteil der Komponente  $i$  an der Membranoberfläche  $x_{M,i}$  berechnet. Um diesen Stoffmengenanteil zu bestimmen, wird die Stoffmengenbilanz in der Konzentrationsgrenzschicht aufgestellt und gelöst. Diese Methodik zur Bestimmung des Stoffmengenanteils an der Membranoberfläche wird in Kapitel 3.2.2 erläutert.

### **Druckverlust in Spacer-gefüllten Kanälen**

Während Spacer die Konzentrationsgrenzschicht destabilisieren und damit die Triebkraft der Permeation positiv beeinflussen, erhöht sich durch Störung der Strömung der Druckverlust in den Kanälen, welches sich negativ auf die Triebkraft auswirkt. Druckverluste entstehen durch Reibung an den Spacerfilamenten und an der Membranoberfläche, durch Verwirbelungen vor und hinter den Filamenten und durch die permanente Richtungsänderung der Strömung [50]. Die Berücksichtigung des Druckverlustes Spacer-gefüllter Kanäle in der Modellierung wird in den Kapiteln 3.2.3 und 4.1.2 beschrieben.

### 2.4.3 Modulverschaltungen

Mehrere Membranmodule werden in großtechnischen Prozessen zu Trennstufen verschaltet. Dabei existieren zwei Grundtypen von Modulverschaltungen – die Reihenschaltung und die Parallelschaltung –, die innerhalb einer Trennstufe miteinander kombiniert werden können und in Abbildung 2-11 dargestellt sind. Bei der Reihenschaltung strömt das Retentat des vorgelagerten Moduls als Feed in das nachgelagerte Modul während das Permeat jedes Moduls zu einem Permeatstrom gemischt wird. Je mehr Membranmodule in Reihe geschaltet werden, desto mehr nähert sich die gesamte Anordnung der Strömungsführung des freien Permeatabflusses an. Die Reihenschaltung bietet den Vorteil, dass die Druckverluste in den Permeatkanälen reduziert werden können.

Bei der Parallelschaltung wird der Feedstrom auf mehrere Module aufgeteilt, sodass in jedem Modul nur ein Teilstrom verarbeitet wird. Die Retentat- und Permeatströme jedes Moduls werden jeweils zu einem Retentat- und einem Permeatstrom gemischt. Mit der Anzahl der parallel geschalteten Membranmodule kann bei gleichbleibender Modulbreite die Eintrittsgeschwindigkeit in ein einzelnes Modul gesteuert werden. Unter Vernachlässigung jeglicher triebkraftmindernder Effekte liefern beide Verschaltungsvarianten bei gleicher gesamter Membranfläche das gleiche Trennergebnis [18, S. 206].

Bei der Auslegung des membranbasierten Trennprozesses unter Berücksichtigung triebkraftmindernder Effekte kommt der Wahl der richtigen Modulverschaltung eine Schlüsselrolle zu. Beispielsweise wird bei der sogenannten Feed-and-Bleed-Verschaltung ein Teil des Retentatstroms zurückgeführt, damit eine gewisse, von dem Feedstrom unabhängig regelbare Überströmungsgeschwindigkeit eingestellt werden kann [41, S. 260]. Dies ist zwar hinsichtlich der benötigten Membranfläche nachteilig, da die Konzentration der bevorzugt permeierenden Komponente im Feed reduziert wird, allerdings wird durch die hohe Überströmungsgeschwindigkeit der triebkraftmindernde Effekt der Konzentrationspolarisation gemindert. Für Trennprozesse mit einem hohen Stufenschnitt wird beispielsweise die sogenannte Tannenbaumstruktur häufig angewandt. Bei dieser reduziert sich die Anzahl parallel geschalteter Membranmodule in der jeweils nachfolgenden Ebene der Reihenschaltung, sodass die Überströmungsgeschwindigkeit je Modul trotz gemindertem Feedstrom ungefähr konstant gehalten werden kann [18, S. 207].

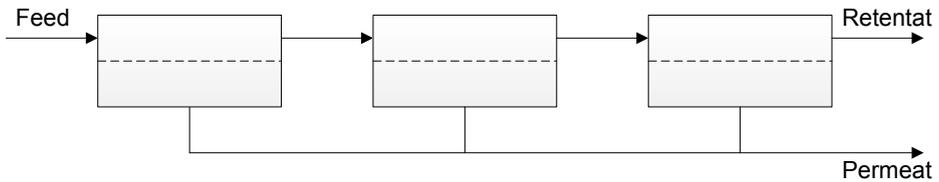
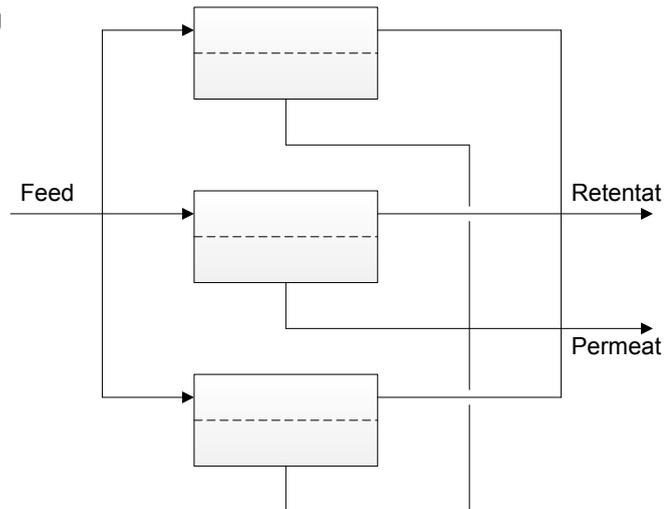
**Reihenschaltung****Parallelschaltung**

Abbildung 2-11: Grundverschaltungen von Membranmodulen in Anlehnung an [18, S. 206]

Bei kleinen Stufenschnitten bietet das vom Helmholtz-Zentrum Geesthacht entwickelte Konzept der Kompartimente die Möglichkeit einer kompakten Bauweise in Reihe geschalteter Membranmodule. Diese Bauweise wird in Abbildung 2-12 dargestellt. Während der Feedstrom über die gesamte Modullänge die Membrantaschen überströmt, strömt der Permeatstrom jeweils nur innerhalb eines Kompartiments zu den Permeatrohren dieses Kompartiments. Die einzelnen Permeatkanäle sind durch thermische Verschweißung voneinander getrennt, sodass jedes Kompartiment aus einem Taschenstapel mit gleich vielen Membrantaschen besteht.

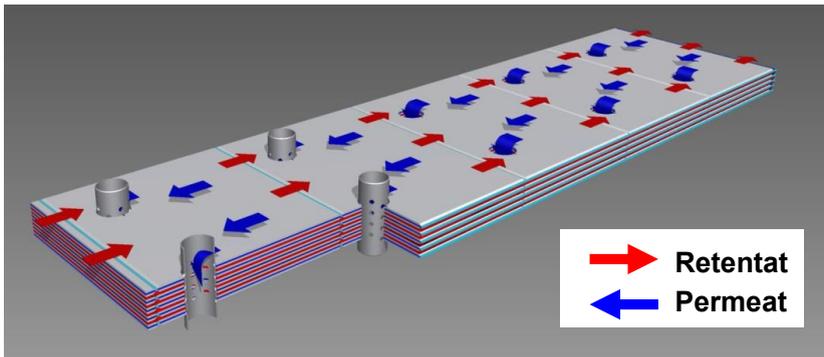


Abbildung 2-12: Schematische Darstellung eines in Kompartimente aufgeteilten Membranmoduls bei beispielhaftem Gegenstrombetrieb; in Anlehnung an [34]

## 2.5 Prozesstechnische Einbindung der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Als ein wichtiger Pfad zum Erreichen der Emissionsminderungsziele von Treibhausgasen wird die Abtrennung von Kohlenstoffdioxid im Kraftwerk weltweit erforscht. Fossil befeuerte Kraftwerke werden als große CO<sub>2</sub>-Punktquellen angesehen, sodass die Reduzierung der Emissionen an diesen Stellen einen großen Effekt auf das Gesamtreduzierungsziel hat und sich eine Abtrennung vor Ort anbietet. Die Abtrennung des im Kraftwerksprozess anfallenden Kohlenstoffdioxids erfolgt im Wesentlichen über die drei Abtrennrouten Post-Combustion Capture, Pre-Combustion Capture und Oxyfuel-Prozesse. Eine Beschreibung der drei Abtrennrouten findet sich im Anhang 8.1. Die Anwendung des membranbasierten Post-Combustion Capture ist für die vorliegende Arbeit durch das Projekt „METPORE II“ vorgegeben.

Bei dieser Abtrennrouten wird der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess als End-of-Pipe-Technologie dem konventionellen Kraftwerksprozess angehängt. In Kapitel 2.5.1 werden die wichtigsten Eckdaten des zugrunde gelegten Kraftwerks beschrieben. Dieses ist das Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen, welches in einer Konzeptstudie ausgelegt wurde. Aufgrund der prozesstechnischen Einbindung hinter dem konventionellen Steinkohlekraftwerk und vor dem CO<sub>2</sub>-Transport ergeben sich die in Kapitel 2.5.2 aufgezeigten Anforderungen und Randbedingungen an die Edukt- und Produktströme des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses. Es wird auch darauf eingegangen, welche Auswirkungen der Teillastbetrieb des Kraftwerks auf diese Randbedingungen hat. Daraufhin wird in Kapitel 2.5.3 der in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegte membranbasierte Abtrennprozess dargestellt. Dieser wurde am IEK-3 entwickelt.

### 2.5.1 Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen

Das mit Steinkohle befeuerte Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen (RWK NRW) ist in der Konzeptstudie so ausgelegt worden, dass es durch optimierte Anlagentechnik einen Nettowirkungsgrad von 45,9 % hat [16]. Dieser liegt weit über dem durchschnittlichen Wirkungsgrad von 39 % [4]. Bei einer thermischen Leistung von 1210 MW<sub>th</sub> entspricht dies einer Nettoleistung von ca. 555 MW<sub>el</sub>. Dabei liegt der Eigenbedarf bei ca. 45 MW, sodass brutto 600 MW<sub>el</sub> Strom produziert werden. Die wichtigsten Auslegungsparameter des RWK NRW fasst Tabelle 2-3 zusammen.

Tabelle 2-3: Eckdaten des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen und Parameter des Rauchgases nach der konventionellen Rauchgasreinigung; Daten aus [16; 30]

<b>Leistungen</b>	
Thermische Leistung	1210 MW <sub>th</sub>
Bruttoleistung	600 MW <sub>el</sub>
Nettoleistung	555 MW <sub>el</sub>
Nettowirkungsgrad	45,9 %
<b>Feuerung und Wasser-Dampf-Kreislauf</b>	
Luftverhältnis der Feuerung	1,15
Massenstrom Kohle	48,4 kg·s <sup>-1</sup>
Frischdampfparameter	285 bar / 600 °C / 620 °C
<b>Rauchgaseigenschaften (nach Entschwefelung)</b>	
Austrittstemperatur	50 °C
Absolutdruck nach Saugzug	1,05 bar
Stoffmengenstrom Rauchgas	70.670 kmol·h <sup>-1</sup>
Produziertes CO <sub>2</sub>	420 t <sub>CO<sub>2</sub></sub> ·h <sup>-1</sup>
Stoffmengenanteil CO <sub>2</sub>	13,5 mol-%
Stoffmengenanteil N <sub>2</sub>	70,1 mol-%
Stoffmengenanteil H <sub>2</sub> O	11,9 mol-% (gesättigt bei 50 °C)
Stoffmengenanteil O <sub>2</sub>	3,7 mol-%
Stoffmengenanteil Ar	0,8 mol-%
Schwefeloxide	< 200 mg·m <sup>-3</sup> (i.N., trocken)
Stickoxide	< 200 mg·m <sup>-3</sup> (i.N., trocken)
Staub	< 30 mg·m <sup>-3</sup> (i.N., trocken)
<b>Kosten (Stand 2004)</b>	
Investitionssumme	517,1 Mio. €
Variable Betriebskosten	7,8 Mio. €·a <sup>-1</sup>

Im Kessel findet eine überstöchiometrische Verbrennung mit einem Luftverhältnis von  $\lambda=1,15$  statt. Für die Ermittlung des Rauchgasstroms und der Rauchgaszusammensetzung wird angenommen, dass die Steinkohle „Kleinkopje“ mit einem Heizwert von  $H_u=25 \text{ MJ}\cdot\text{kg}^{-1}$  zur Feuerung verwendet wird. Ihre Zusammensetzung wird im Anhang in Tabelle 8-2 angegeben. Die konventionelle Rauchgasreinigung besteht aus der Entstickung, der Entstaubung und der Entschwefelung des Rauchgases. Sie ist in der Konzeptstudie so ausgelegt, dass die in Tabelle 2-3 aufgelisteten Emissionsgrenzwerte für Schwefeloxide, Stickoxide und Staub eingehalten werden. Wird der Rauchgasstrom eines konventionellen Kraftwerks nach der Rauchgasreinigung über einen Kamin an die Umgebung abgegeben, ist meist eine Wiedererwärmung des Rauchgases notwendig, um eine Kondensation an der Kaminwand zu vermeiden [51]. Die im Kondensat befindlichen aggressiven Spurenelemente können ansonsten zu Korrosion führen. Das RKW NRW ist allerdings so konzipiert, dass das Rauchgas über den Kühlturm an die Umgebung abgegeben wird, sodass eine Wiedererwärmung nicht notwendig ist [16]. Das Rauchgas hat nach der Rauchgasentschwefelungsanlage durch den Saugzug einen Absolutdruck von 1,05 bar [30]. Weiterhin liegt die Temperatur des Rauchgases nach der Entschwefelung bei ca. 50 °C [16; 52, S. 749]. Nach der Feuerung ändert sich

die Zusammensetzung des Rauchgases – abgesehen von der Entfernung der Spurenelemente SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> und Staub – in zwei Prozessschritten. Zum einen wird in der vorliegenden Arbeit angenommen, dass durch den Luftvorwärmer ein Falschluffstrom von 9 % der Verbrennungsluft in den Rauchgasstrom eingetragen wird [53, S. L56]. Zum anderen ändert sich der Wasseranteil durch die Wasserdampf-Sättigung in der Rauchgasentschwefelungsanlage bei einer Temperatur von 50 °C. Die sich aus diesen Bedingungen ergebene Rauchgaszusammensetzung ist ebenfalls in Tabelle 2-3 hinterlegt.

Zusätzlich sind die zwei wesentlichen Kostendaten des RKW NRW in Tabelle 2-3 festgehalten. Die Investitionssumme des gesamten RKW NRW beläuft sich auf 517,1 Mio. €, wobei das Jahr 2004 das Basisjahr ist. Unter Annahme dieses Basisjahres liegen die jährlichen variablen Betriebskosten bei ca. 7,8 Mio. €. Diese gehen in die Berechnung der Stromgestehungskosten des RKW NRW mit angehängtem CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess gemäß Kapitel 3.5.1 ein.

### 2.5.2 Randbedingungen zur Integration in die Prozesskette

Der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess wird zwischen dem konventionellen Kraftwerk und dem CO<sub>2</sub>-Transport in die Prozesskette des CCUS integriert. Der jeweils nachgelagerte Prozessschritt gibt Anforderungen bezüglich der Konzentrationen einzelner Komponenten im Rauchgas für den vorgelagerten Prozessschritt vor. Für die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung muss das Rauchgas nach der konventionellen Rauchgasreinigung vorbehandelt werden. Ebenfalls sind für den CO<sub>2</sub>-Transport beziehungsweise die CO<sub>2</sub>-Speicherung Reinheiten einzuhalten. Diese Anforderungen an die Edukt- und Produktströme des Abtrennprozesses werden im Folgenden beschrieben. Die Eigenschaften des Rauchgases nach der konventionellen Rauchgasreinigung des RKW NRW sind in Kapitel 2.5.1 für Vollastbetrieb angegeben. Im Teillastbetrieb ändern sich diese Eigenschaften, sodass die Randbedingungen für den Abtrennprozess neu definiert werden müssen. Wie diese Änderungen der Randbedingungen zu berücksichtigen sind, wird im Folgenden ebenfalls erläutert.

#### **Anforderungen an die Eduktströme und die Produktströme**

Zunächst werden die Anforderungen an die Eduktströme des Abtrennprozesses beschrieben. Die im Kraftwerksrauchgas enthaltenen Komponenten können entweder die Membranfläche zusetzen oder Anlagenkomponenten des Abtrennprozesses wie die Membran, die Kompressoren oder die Wärmeübertrager beschädigen. Daher sind für einige Komponenten Grenzwerte am Eintritt des Abtrennprozesses einzuhalten, die in Tabelle 2-4 aufgelistet sind.

Der im Rauchgas enthaltene Reststaub kann sich an der Membranoberfläche durch elektrostatische Wechselwirkungen mit dem Membranpolymer oder durch Formschluss mit dem Spacer ablagern. Daher ist der Staub nach der Rauchgasentschwefelung abzutrennen. Der in Tabelle 2-4 angegebene Grenzwert für Staub im Kraftwerksrauchgas von 10 mg·m<sup>-3</sup>(i.N.) wird so festgelegt, dass selbst bei extrem konservativer Abschätzung das Reinigungsintervall des Membranmoduls länger als fünf Wochen beträgt. Hierbei wird angenommen, dass maximal 10 % der nicht von Feedspacern besetzten Feedkanäle zugesezt werden dürfen und sich 100 % des Staubs aufgrund der Feedspacer in den ersten 0,1 m der Feedkanäle ablagern. Der Staub hinter der konventionellen Rauchgasentschwefelung besteht hauptsächlich aus Gips, dessen Schüttdichte 600 bis 1200 kg·m<sup>-3</sup> beträgt [54].

Zur Vermeidung der Kondensation des Wasserdampfes an der Membranoberfläche muss der Partialdruck des Wasserdampfes unterhalb des Sättigungsdampfdruckes bei der Betriebstemperatur des membranbasierten Abtrennprozesses liegen. Ein Flüssigkeitsfilm auf der Membranoberfläche würde ansonsten den Transportweg der Gasmoleküle zur Membran zusetzen und damit die Permeation behindern. Weiterhin besteht die Gefahr, dass Spuren von Schwefeloxiden (SO<sub>x</sub>) mit dem Wasser schwefelige Säure bilden, die die Membran angreifen könnte. Um dies zu vermeiden wird zum einen Wasser vom Rauchgas abgeschieden, sodass der Wassertaupunkt unterschritten wird. Zum anderen wird ein Grenzwert von 10 mg·m<sup>-3</sup>(i.N., trocken) für SO<sub>x</sub> vorgegeben, welcher dem Auslegungswert der im Innovationszentrum Kohle in Niederaussem betriebenen Hochleistungs-Rauchgasentschwefelungsanlage entspricht [55].

Tabelle 2-4: Reinheitsanforderungen für das Rauchgas vor und für das CO<sub>2</sub>-Produktstrom nach dem membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess, falls das CO<sub>2</sub> unterirdisch gespeichert wird [10; 30; 56]

Anforderungsgröße	Grenzwert	Limitierung
<b>Rauchgasvorbehandlung*</b>		
Staub	< 10 mg·m <sup>-3</sup> (i.N., trocken)	Vermeidung von Ablagerung an der Membranoberfläche
H <sub>2</sub> O	$p_{\text{H}_2\text{O}} < p_{\text{H}_2\text{O}}^s(T)$	Vermeidung von Kondensation an der Membranoberfläche
SO <sub>x</sub>	< 10 mg·m <sup>-3</sup> (i.N., trocken)	Beschädigung der Membran durch Bildung schwefeliger Säure
<b>CO<sub>2</sub>-Produktstrom</b>		
CO <sub>2</sub> -Reinheit	> 95,5 %	Residuum übriger Restriktionen
H <sub>2</sub> O-Anteil	< 500 ppm	Löslichkeitsgrenze H <sub>2</sub> O in CO <sub>2</sub>
Verunreinigungen (SO <sub>x</sub> , NO <sub>x</sub> , H <sub>2</sub> S, CO)	SO <sub>x</sub> , NO <sub>x</sub> : < 100 ppm, H <sub>2</sub> S: < 200 ppm, CO: < 2000 ppm	Gesundheits- und Sicherheitsaspekte
Anteil nicht-kondensierbarer Gase (N <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> , Ar, H <sub>2</sub> , O <sub>2</sub> )	In Summe < 4 Vol.-%	Vorschlag aus ENCAP Projekt, H <sub>2</sub> : Ausnutzung des Energieinhalts
O <sub>2</sub> (bei EOR)	< 100 bis 1000 ppm	Fehlende praktische Erfahrung mit O <sub>2</sub> im Untergrund

\* Eigene Annahmen

In [56] wird eine geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 % angegeben, wobei nicht spezifiziert wird, ob es sich um Volumen- oder Stoffmengenanteile handelt. Weiterhin wird kein Bezugszustand angegeben. Daher wird aus diesem Vorschlag in der vorliegenden Arbeit eine Zielvorgabe für die CO<sub>2</sub>-Reinheit des CO<sub>2</sub>-Produktstroms von 95,5 mol-% definiert. Reinheitsanforderungen für die Weiterverwendung des CO<sub>2</sub> als Edukt in der chemischen Industrie werden in der vorliegenden Arbeit nicht berücksichtigt, da sie vom Einzelfall abhängen. Weiterhin wird standardmäßig ein CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad von 70 % angenommen, der einen Kompromiss aus energetischen und ökologischen Faktoren bildet [57; 58]. Bei diesem Abtrenngrad kann die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung hinsichtlich des Wirkungsgradverlustes mit der konventionellen chemischen Absorption konkurrieren. Bei der chemischen Absorption wird

allerdings meist ein CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad von 90 % angenommen, bei dem der Wirkungsgradverlust ca. 1 %-Punkte niedriger als in einem membranbasierten Abtrennprozess liegt [58].

Für den CO<sub>2</sub>-Transport muss die Entstehung von freiem Wasser vermieden werden, welches die Korrosionsneigung beim Transport fördern würde. Die Löslichkeitsgrenze von Wasser in CO<sub>2</sub> liegt bei Drücken über 71,3 bar und in einem Temperaturintervall von -10 °C und 25 °C oberhalb 1300 ppm [56]. Dennoch wird empfohlen, den Wassergehalt des CO<sub>2</sub>-Produkt-gases bis auf 500 ppm zu reduzieren [56].

Den Vorgaben für die Verunreinigungen – also den Anteilen an SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, H<sub>2</sub>S und CO – liegen Gesundheits- und Sicherheitsaspekte zugrunde [10]. Der Anteil nicht-kondensierbarer Gase – also N<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, Ar, H<sub>2</sub> und O<sub>2</sub> – sollte in Summe 4 Vol.-% nicht überschreiten [56]. Zum einen vergrößern sich das Gasvolumen und damit die Größe der Speicherstätte, falls das CO<sub>2</sub> gespeichert werden soll. Zum anderen ist ein höherer Volumenstrom des CO<sub>2</sub>-Produkt-gases zu komprimieren und zu transportieren, sodass die Betriebskosten steigen. Besondere Anforderungen gelten hinsichtlich des Sauerstoffs im CO<sub>2</sub>-Produktstrom. Aufgrund fehlender praktischer Erfahrung mit Sauerstoff als Oxidationsmittel in Untergrundspeichern wird hier ein Grenzwert von 100 bis 1000 ppm – vor allem für die Nutzung des CO<sub>2</sub> beim Enhanced Oil Recovery – angegeben [10].

Für den effektiven Transport des abgetrennten CO<sub>2</sub> vom Ort der Abtrennung zum Ort der Weiterverarbeitung beziehungsweise Speicherung per Pipeline muss der CO<sub>2</sub>-Produktstrom in einen entsprechenden Aggregatzustand gebracht werden. Der überkritische Zustand stellt dabei einen Kompromiss aus Flüssigkeits-ähnlicher Dichte und Gas-ähnlicher Mobilität dar, sodass thermodynamische Bedingungen oberhalb des kritischen Punktes des reinen CO<sub>2</sub> von 304,13 K und 73,8 bar angestrebt werden [59, S. 69; 60, S. 47]. Mit zunehmendem Stickstoffanteil im kohlendioxidreichen Produktgemisch bildet sich ein Zweiphasengebiet aus, bei dem die Siedelinie je nach Stickstoffanteil bei Drücken von über 90 bar bei Raumtemperatur liegt [59, S. 85; 60, S. 48]. Unter Berücksichtigung der Druckverluste bei langen Transportwegen in der Pipeline wird der CO<sub>2</sub>-Produktstrom daher für den Transport und die Speicherung auf 110 bar komprimiert, sodass Zweiphasenströmungen im Rohr während des Transports vermieden werden.

### **Änderung der Randbedingungen bei Teillast**

In Zukunft steigt der Anteil der Einspeisung fluktuierender erneuerbarer Energien an. Damit schwankt auch die Residuallast<sup>5</sup>, die im Falle positiver Residuallast vorerst von fossil befeuerten Kraftwerken gedeckt wird. Ist die aktuell abzudeckende Leistung geringer als die installierte Leistung aller fossil befeuerten Kraftwerke, werden nicht alle überschüssigen Kraftwerke abgeschaltet, sondern ein Teil von ihnen wird als Warmreserve in Teillast weiter betrieben. Dies liegt daran, dass Anfahrvorgänge von Kohlekraftwerken zwischen 2,5 und 4 Stunden beim Heißstart und 5 bis 8 Stunden im Falle eines Kaltstarts dauern und damit nicht auf schnelle und hohe Lastschwankungen reagieren können [62]. Daher muss auch der membranbasierte Trennprozess teillastfähig sein und die geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit im CO<sub>2</sub>-Produktstrom auch bei Teillast einhalten können.

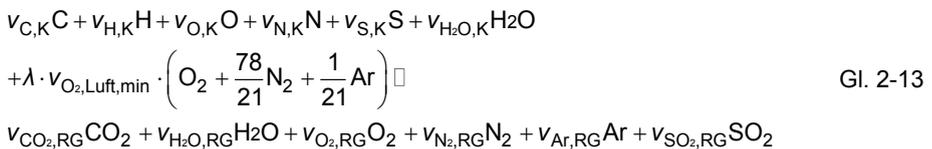
Laständerungen im Kraftwerk durch Anpassung der Brennstoffzufuhr führen zu Schwankungen im Rauchgasvolumenstrom und in dessen Zusammensetzung. Ein geringerer Rauch-

---

<sup>5</sup> Die Residuallast ist definiert als „die Differenz zwischen benötigter Leistung und von nicht steuerbaren Kraftwerken erbrachter Leistung in einem Stromnetz“ [61].

gasvolumenstrom bei Teillast liegt an der geringeren Brennstoffzufuhr in die Brenner. Die Zusammensetzung des Rauchgases ändert sich bei Teillast ebenfalls, da das Luftverhältnis der Feuerung  $\lambda$  im Teillastbetrieb erhöht ist. Dies liegt daran, dass der Luftmassenstrom durch Falschlufteintrag nicht beeinflussbar und somit konstant ist und eine minimale Luftgeschwindigkeit in den Brennern für eine stabile Flammenbildung notwendig ist [63].

Um die veränderten Rauchgaseigenschaften bei der Auslegung des Abtrennprozesses bei Teillastbetrieb berücksichtigen zu können, müssen sowohl Rauchgasvolumenstrom als auch Rauchgaszusammensetzung für den jeweiligen Teillast-Betriebspunkt quantifiziert werden. Um die Zusammensetzung des Rauchgases eindeutig bestimmen zu können, ist entweder die Kenntnis des Luftverhältnisses der Feuerung oder des Stoffmengenanteils einer Komponente des Rauchgases notwendig. Lediglich der Anteil Wasserdampf im Rauchgas lässt keine Rückschlüsse auf die Stöchiometrie der Feuerung zu, da das Rauchgas durch die Rauchgasentschwefelung mit Wasserdampf gesättigt wird und somit nicht bekannt ist, wie hoch der Wasseranteil vor der Rauchgasreinigung ist. Bei der Berechnung der Zusammensetzung des Rauchgases wird angenommen, dass die Kohle gemäß Gl. 2-13 vollständig verbrannt wird – also der Kohlenstoff, der Wasserstoff und der Schwefel vollständig umgesetzt werden – und die Verbrennungsluft zu 21 mol-% aus Sauerstoff, zu 78 mol-% aus Stickstoff und zu 1 mol-% aus Argon besteht.



In Gl. 2-13 stehen die  $v_i$  für den stöchiometrischen Koeffizienten der Komponente  $i$  der Verbrennungsreaktion. Für die Bestandteile der Kohle, die in Gl. 2-13 mit dem Index K gekennzeichnet sind, ergeben sich die  $v_i$  aus der im Anhang in Tabelle 8-2 vermerkten Zusammensetzung der Kohle. Dabei wird von der Verbrennung von einem Kilogramm Kohle ausgegangen und die sich ergebenden Massen der Komponenten mit ihren Molmassen in Stoffmengen umgerechnet. Der stöchiometrische Koeffizient des Luftsauerstoffs  $v_{O_2, \text{min}}$  ergibt sich nach Gl. 2-14 als minimaler Sauerstoffbedarf aus der Bedingung der vollständigen Verbrennung. Das Luftverhältnis  $\lambda$  gibt an, um wieviel der tatsächlich zugeführte Luftsauerstoff von diesem minimalen Sauerstoffbedarf abweicht. Die Komponenten des Rauchgases sind in Gl. 2-13 mit dem Index RG gekennzeichnet.

$$v_{O_2, \text{min}} = v_C + v_H/4 + v_S - v_O/2 \quad \text{Gl. 2-14}$$

Nach der Feuerung ändert sich die Zusammensetzung des Rauchgases in zwei Prozessschritten, wie in Kapitel 2.5.1 beschrieben wird. Das Rauchgas ist bei 50 °C nach der Rauchgasentschwefelung mit Wasserdampf gesättigt und durch Falschlufteintrag im Luftvorwärmer, der 9 % des Frischluftmassenstroms ausmacht, mit Umgebungsluft gemischt.

Der Massenstrom Kohle  $\dot{m}_{\text{Kohle, Teillast}}$  ergibt sich aus der für den Teillast-Betriebspunkt notwendigen thermischen Leistung  $\dot{Q}_{\text{th, Teillast}}$  und dem unteren Heizwert der Kohle  $H_{u, \text{Kohle}}$  gemäß Gl. 2-15. Aufgrund der sich ändernden Dampfparameter und der schlechteren Wirkungsgrade der Hilfsaggregate ist der Wirkungsgrad des Kraftwerks bei Teillastbetrieb  $\eta_{\text{el, Teillast}}$  niedriger als der Wirkungsgrad bei Vollast  $\eta_{\text{el, Vollast}}$  [64]. Der Anteil der elektrischen Leistung bei Teillast  $P_{\text{el, Teillast}}$  an der elektrischen Leistung bei Vollast wird über den Faktor  $f_{\text{Teillast}}$  ausgedrückt.

$$\dot{m}_{\text{Kohle,Teillast}} \cdot H_{\text{u,Kohle}} = \dot{Q}_{\text{th,Teillast}} = \frac{P_{\text{el,Teillast}}}{\eta_{\text{el,Teillast}}} = \frac{\dot{Q}_{\text{th,Volllast}} \cdot \eta_{\text{el,Volllast}} \cdot f_{\text{Teillast}}}{\eta_{\text{el,Teillast}}} \quad \text{Gl. 2-15}$$

Aus dem Kohlemassenstrom und den Stoffmengenströmen der Rauchgaskomponenten je Kilogramm Kohle ergeben sich der gesamte Rauchgasstoffmengenstrom und dessen Zusammensetzung.

### 2.5.3 Membranbasierter CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess des IEK-3

Semipermeable Membranen können eingesetzt werden, um aus dem Kraftwerksrauchgasstrom das CO<sub>2</sub> abzutrennen. Durch die Anreicherung des CO<sub>2</sub> im Permeat sinkt über die Länge des Membranmoduls die Triebkraft für CO<sub>2</sub> stärker als für N<sub>2</sub>, sodass am Ende des Moduls auch N<sub>2</sub> verstärkt durch die Membran permeiert. Je länger das Membranmodul, desto größer ist zwar der CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad, aber gleichzeitig sinkt durch die N<sub>2</sub>-Permeation die CO<sub>2</sub>-Reinheit im Permeat. Ein einstufiger membranbasierter Abtrennprozess kann die in Kapitel 2.5.2 beschriebenen Anforderungen an die CO<sub>2</sub>-Reinheit bei gleichzeitig hohen Abtrenngraden von mindestens 50 % nicht erfüllen [30; 65].

Durch einen mehrstufigen Prozess ist dieses Trennergebnis zu erreichen. Es gibt mehrstufige Prozesse mit und ohne Einsatz von Spülgas. Der in [26] vorgestellte Prozess nutzt die Verbrennungsluft als Spülgas in einer Membrantrennstufe, welches sich mit CO<sub>2</sub> anreichert. Jenes angereicherte Gas wird dem Brenner zugeführt. Dies ergibt geänderte Bedingungen im Brennraum, sodass dieser neu ausgelegt und dimensioniert werden muss. Daher ist dieser Ansatz zum Nachrüsten eines bestehenden Kraftwerks ungeeignet. Die Nachrüstbarkeit ist jedoch der zentrale Vorteil des Post-Combustion Capture. Daher kommt jene Prozessführung nicht in Frage. Als Spülgas kann ebenfalls Wasserdampf, der aus dem Permeat der ersten Membrantrennstufe durch Kondensation abgetrennt und anschließend wieder verdampft wird, verwendet werden [66]. Diese Prozessführung ist allerdings sehr komplex und energetisch nicht vorteilhaft, sodass sie als möglicher Prozess wegfällt.

Daher wurde in [15] ein zweistufiger Abtrennprozess entwickelt, welcher in Abbildung 2-13 dargestellt ist. Die CO<sub>2</sub>-Abtrennung ist hinter der konventionellen Rauchgasreinigung angeordnet und kommt ohne nennenswerte Eingriffe in das Kraftwerk aus. Das Rauchgas hat am Eintritt in den Abtrennprozess – wie in Kapitel 2.5.1 erörtert – eine Temperatur von 50 °C. Stickstoff ist die Hauptkomponente im Kraftwerksrauchgas, welche möglichst nicht durch die Membran permeieren soll und sich damit im Retentat anreichert. Für eine höhere Reinheit der bevorzugt permeierenden Komponente – also CO<sub>2</sub> – im Permeat sind daher eine hohe CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>-Selektivität und damit eine niedrige Temperatur im Abtrennprozess notwendig. Eine zu hohe Selektivität ist aus prozesstechnischer Sicht jedoch nicht förderlich, da die benötigte Membranfläche zum Erreichen eines festgelegten Abtrenngrades ansteigt. Dies liegt daran, dass sowohl die Triebkraft für CO<sub>2</sub> aufgrund des hohen CO<sub>2</sub>-Partialdruckes im Permeat als auch die CO<sub>2</sub>-Permeanz niedriger sind [26]. Damit die temperaturabhängigen Membraneigenschaften optimal ausgenutzt werden können, muss das Rauchgas in der Kühlwäsche auf 25 °C abgekühlt werden. Druckverluste in der Kolonne der Kühlwäsche werden in der vorliegenden Arbeit vernachlässigt. Weiterhin ist eine Zudosierung von Natronlauge (NaOH) in den Kühlwasserstrom vorgesehen. Diese soll Spuren von SO<sub>2</sub> entfernen, die sonst in Kombination mit kondensierendem Wasserdampf zur Bildung von schwefeliger Säure führen können. Weiterhin entfernt die Kühlwäsche in der Rauchgasentschwefelungsanlage anfallende Gipspartikel aus dem Rauchgasstrom. Damit werden die in Kapitel 2.5.2 definierten Grenzwerte für SO<sub>2</sub> und Staub vor dem eigentlichen CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess eingehalten.

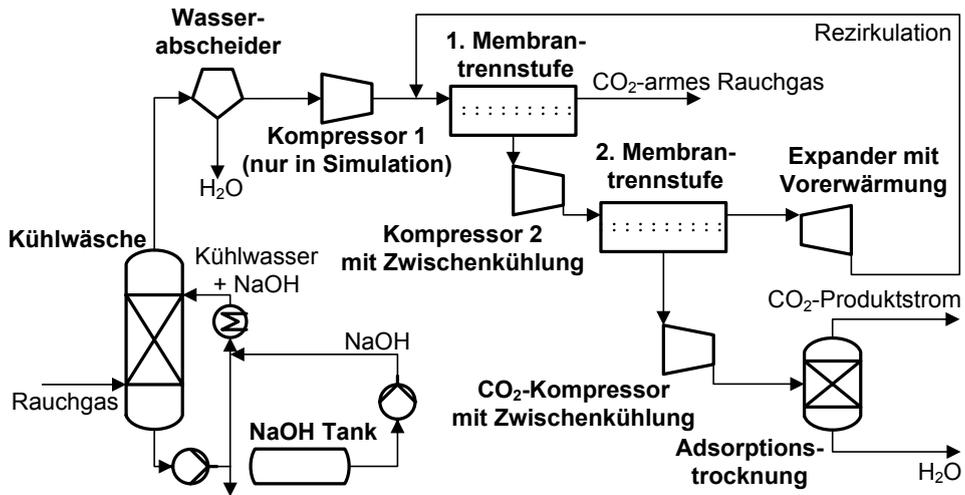


Abbildung 2-13: Membranbasierter CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess aus Kraftwerksrauchgas in Anlehnung an [15]

Die Auswirkungen einer Wasserabtrennung an verschiedenen Stellen im CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess auf den Energiebedarf und die benötigte Membranfläche wird in [30] untersucht. Bei konstanter Membranfläche ergibt sich einerseits ein um 8 bis 9 %-Punkte höherer CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad bei Simulation mit Wasserdampf gegenüber der Simulation eines binären Gemisches aus CO<sub>2</sub> und N<sub>2</sub> mit einem Abtrenngrad von 70 %. Andererseits steigt der Wirkungsgradverlust von 6,4 %-Punkten auf 7,8 %-Punkten bis 8,8 %-Punkten je nach Anteil der Wasserabscheidung vor dem eigentlichen CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess, wenn die Prozesssimulation aus [30] zugrunde gelegt wird. Der erhöhte CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad liegt an dem in Kapitel 2.1 erläuterten Spülgasemffekt, den der schnell durch die Membran permeierende Wasserdampf auf der Permeatseite ausüben kann. Der erhöhte Energieverbrauch ist mit den höheren Volumenströmen zu begründen, da das Wasser durch den kompletten Prozess mit transportiert wird. In der vorliegenden Arbeit wird eine Möglichkeit zur Wasserabscheidung nach der Kühlwäsche berücksichtigt. Standardmäßig werden zwei Drittel des Wasserdampfes abgetrennt, was einen Kompromiss aus vorteilhaftem Spülgasemffekt und nachteiligem Energiebedarf darstellt [67].

Hinter dem Wasserabscheider ist der Kompressor 1 in den Prozesssimulationen in Aspen Plus<sup>®</sup> vorgesehen. Dieser soll die in den Membranmodulen der erste Trennstufe auftretenden Druckverluste kompensieren. In der Realität wird dies über eine erhöhte Leistung des Rauchgasgebläses bewerkstelligt, welches in der vorliegenden Arbeit jedoch nicht simuliert wird, da es Teil der vorgelagerten, konventionellen Rauchgasreinigung ist. Das Rauchgas wird mit einem Rezirkulationsstrom gemischt und in die erste Membrantrennstufe – im Folgenden vereinfacht erste Trennstufe genannt – geleitet. Hier sind mehrere Membranmodule parallelgeschaltet. Der Retentatstrom dieser Trennstufe hat Atmosphärendruck und wird als CO<sub>2</sub>-armes Rauchgas in die Atmosphäre emittiert und hat bei einem CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad von 70 % einen CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil von ca. 5 mol-%.

Um eine Partialdruckdifferenz in den Membranmodulen der ersten Trennstufe zu generieren, wird im Permeat ein Vakuum von 150 mbar angelegt. Dieser Strom wird in dem vierstufigen Kompressor 2 mit Zwischenkühlung und Wasserabscheidung auf 4 bar komprimiert. Axiale Kompressoren sind für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas geeignet, da sie hohe Volumenströme verdichten können und dabei im Gegensatz zu radialen Kompressoren höhere polytrope Wirkungsgrade besitzen [67]. Für die vorliegende Arbeit werden axiale Kompressoren mit einem polytropen Wirkungsgrad von 85 % angenommen. Durch die Zwischenkühlung auf 25 °C nach jeder Kompressionsstufe bei Kompressor 2 nähert sich die Volumenänderungsarbeit der energetisch günstigsten, isothermen Volumenänderungsarbeit an. Für jeden Wärmeübertrager der Zwischenkühlungen wird ein Druckverlust von 30 mbar angenommen.

Der auf 4 bar komprimierte Permeatstrom der ersten Trennstufe wird in die zweite Membrantrennstufe – im Folgenden vereinfacht zweite Trennstufe genannt – geleitet, die wiederum aus mehreren parallelgeschalteten Membranmodulen besteht. Während die erste Trennstufe einen Großteil des CO<sub>2</sub> aus dem Rauchgas abtrennt und für einen hohen CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad sorgt, dient die zweite Trennstufe dazu, eine hohe CO<sub>2</sub>-Reinheit zu erhalten. Auf der Permeatseite liegt in der zweiten Trennstufe ein Druck von 1 bar an. Der CO<sub>2</sub>-Produktstrom wird, wie in Kapitel 2.5.2 beschrieben, auf die für den Transport geforderten 110 bar komprimiert. Hierzu wird ein achtstufiger Kompressor mit Zwischenkühlung und Wasserabscheidung verwendet. Auch hier weist die mehrstufige Kompression mit Zwischenkühlung energetische Vorteile gegenüber der einstufigen Verdichtung auf. Wiederum wird in den Wärmeübertragern ein Druckverlust von 30 mbar und für die Kompressoren ein polytroper Wirkungsgrad von 85 % angenommen. Damit die in Kapitel 2.5.2 beschriebene Forderung nach einem Wassergehalt von 500 ppm im CO<sub>2</sub>-Produktstrom eingehalten wird, ist der CO<sub>2</sub>-Kompressionsstrom eine Adsorptionstrocknung nachgeschaltet. Der CO<sub>2</sub>-Produktstrom wird nach der letzten Kompressionsstufe auf 30 °C gekühlt.

Der Retentatstrom der zweiten Trennstufe hat gegenüber dem unbehandelten Rauchgas einen höheren CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil. Zur Erhöhung der Triebkraft in der ersten Trennstufe wird dieser Retentatstrom der zweiten Trennstufe vor die erste Trennstufe zurückgeführt. Zuvor wird der Strom auf den Druck entspannt, den das Rauchgas nach Kompressor 1 hat. Diese Expansion ist zweistufig aufgebaut. Vor jeder Expansionsstufe wird der Gasstrom vorgewärmt, da er sich bei der Expansion abkühlt und wird somit einer isothermen Expansion angenähert. Als Maßnahme zur besseren Wärmeintegration wird die Wärme von dem erwärmten Strom des Permeats aus der ersten Trennstufe nach der ersten Kompressionsstufe an den Retentatstrom übertragen [68]. Zudem kann die aus der Expansion gewonnene mechanische Arbeit zum Antrieb der Kompressoren genutzt werden, sodass sich der Eigenbedarf des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses reduziert.

### 3 Gesamtmodell zur Modulauslegung

In Kapitel 3 werden die Modellgrundlagen dargestellt, die für die fluiddynamische Simulation des Membranmoduls in ANSYS® FLUENT® und für die thermodynamische Simulation in Aspen Plus® notwendig sind, um die Abtrennperformance des Membranmoduls zu bewerten. Zunächst werden in Kapitel 3.1 sowohl die Methodik der Modulauslegung in der vorliegenden Arbeit als auch Ansätze zur Modulauslegung in der Literatur geschildert. Die grundlegenden Modellierungsgleichungen zur Beschreibung der membranbasierten Gastrennung werden in Kapitel 3.2 beschrieben. Speziell für die CFD-Simulationen erforderliche Modellierungsannahmen werden in Kapitel 3.3 behandelt. Dabei wird ebenfalls auf die räumliche Diskretisierung des Fluidraums mittels des von ANSYS® zur Verfügung gestellten ANSYS® ICEM CFD™ eingegangen. Weiterhin werden die Bilanzgleichungen, die die Grundlage der Fluid-dynamik-Simulationen bilden, erläutert. Für die Auslegung des Zulaufbereichs des Membranmoduls wird die Theorie der Auslegung von Querschnittserweiterungen in Kapitel 3.4 erörtert. Abschließend wird in Kapitel 3.5 das Kostenmodell vorgestellt, welches zur ökonomischen Analyse des Abtrennprozesses und zur Auslegung der Membranmodule in den zwei Trennstufen verwendet wird.

#### 3.1 Methodik der Modulauslegung

Ansätze zur Modulauslegung aus der Literatur beschreiben meist ein Optimierungsziel wie die Minimierung der Membranfläche oder des Druckverlustes. Der Vergleich verschiedener Modulbauformen ergibt, dass der Gegenstrombetrieb hinsichtlich der Abtrennperformance und des spezifischen Energieverbrauchs vorteilhaft ist [15]. Eine Optimierung der Modulverschaltung und der Geometrie der Zu- und Ablaufrohre bezüglich Druckverlust und Homogenität der Abtrennperformance der einzelnen Module untereinander findet sich in [69]. Zum einen wurde die Geometrie des Permeatabzugs sowie deren Verbindung zu den Permeatrohren optimiert. Es wurde festgestellt, dass größere Flächen des Permeatabzugs die Strömungsgeschwindigkeit im Permeat reduzieren und sich damit der Druckverlust verringert. Weiterhin wird eine Parallelschaltung der Membranmodule untersucht, bei der alle Module durch ein Zulaufrohr gespeist werden, wobei das erste Modul zuerst versorgt wird. Diese Verschaltung bringt den Nachteil einer inhomogenen Abtrennleistung der Module, sodass als Verbesserung eine mittige Anordnung des Zulaufrohres vorgeschlagen wird.

Weitere Arbeiten beschäftigen sich mit der Modellierung und Strömungssimulation einzelner Kanäle beziehungsweise Kapillare eines Membranmoduls und vergleichen die Simulationsergebnisse mit experimentellen Daten [70]. Diese wenden das entwickelte Modell jedoch nicht zur Optimierung eines Membranmoduls an. In [71] werden Strömungssimulationen zur Optimierung der Strömungsführung in einem Taschenmodul verwendet. Hier wird ein Leerkanal ohne Spacer zwischen zwei Membrantaschen angenommen. Die Druckverluste und die Auswirkungen auf die Strömungsführung der Spacer werden in gesonderten Strömungssimulationen untersucht, jedoch nicht in der Optimierung der Strömungsführung berücksichtigt. Für eine homogenere Überströmung einer Membrantasche in einem konventionellen Taschenmodul gemäß Abbildung 2-8 f) wird der Einsatz von Leitblechen analysiert. Zwar ergibt sich ein Vorteil bei Verwendung von Leitblechen, allerdings liegt in den Kanälen kein Gegendruck durch die Spacer vor und die Strömungsführung ist mit der des in der vorliegenden Arbeit untersuchten Gegenstrommoduls nicht zu vergleichen.

Der vorliegenden Arbeit liegt ein ganzheitlicher Ansatz zur Konzeption und Auslegung eines Membranmoduls zugrunde, der fluiddynamische, prozesstechnische und ökonomische Aspekte einbezieht. Das neuartige Membranmodul für Flachmembranen, welches nahezu komplett im Gegenstrom betrieben werden kann, soll so ausgelegt werden, dass es zur effizienten Reinigung von Gasgemischen eingesetzt werden kann. Insbesondere wird das Membranmodul in der vorliegenden Arbeit für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas dimensioniert.

Die Strömungssimulationen dienen dazu, eine optimierte Ausnutzung der verbauten Membranfläche zu gewährleisten. Als Bewertungsgröße wird die in Gl. 2-7 definierte Moduleffizienz verwendet. Durch die Strömungssimulationen wird die Strömungsverteilung innerhalb des Membranmoduls dreidimensional visualisiert. Somit können mögliche Totzonen sowie Bypass-Strömungen identifiziert beziehungsweise lokalisiert werden. Um diese zu verhindern, werden Maßnahmen zur verbesserten Strömungsführung analysiert. Diese Simulationen werden mit der Simulationssoftware ANSYS® FLUENT® 14.5 durchgeführt. Dabei wird ein Modul in Pilotanlagengröße – das sogenannte Prototyp-Modul mit einer Membranfläche von ca. 5,66 m<sup>2</sup> – zugrunde gelegt.

Die für ein Membranmodul mit Flachmembranen charakteristischen Komponenten – Membran und Spacer – werden über Ersatzmodelle angenähert. Die Membran wird als feste Wand modelliert, bei der über eine benutzerdefinierte Funktion (User Defined Function, UDF) auf einer Seite eine Quelle und auf der anderen Seite eine gleich große Senke implementiert werden. Dieses Modell wird in Kapitel 3.2.1 vorgestellt. Der Spacer wird durch einen porösen Körper modelliert, welcher den gleichen Druckverlust pro Meter wie der Spacer hat. Dazu wird die Modellierung poröser Körper in Kapitel 3.3.4 erläutert. Neben dem Druckverlust wird auch ein weiterer triebkraftmindernder Effekt in der Membrantechnik – die Konzentrationspolarisation – berücksichtigt.

Das Modul im Kraftwerksmaßstab wird mithilfe von Prozesssimulationen ausgelegt. Die thermodynamischen Prozesssimulationen werden mit der Software Aspen Plus® V8.4 durchgeführt. In Aspen Plus® sind Standardbausteine chemischer Prozesse wie Kolonnen, Wärmeübertrager, Kompressoren, Mixer und Splitter mit den zugehörigen Massen- und Energiebilanzen sowie eine umfangreiche, vom Benutzer erweiterbare, Stoffdatenbank hinterlegt. Das Membranmodul gehört bislang nicht zu den Standardkomponenten von Aspen Plus®. Hier bietet Aspen die Möglichkeit, mit der hauseigenen Software Aspen Custom Modeler® V8.4 (ACM) benutzerdefinierte Prozessbausteine zu programmieren und anschließend in Aspen Plus® zu importieren. Das in ACM programmierte Modell bildet die Modulgeometrie vereinfacht ab. Im Wesentlichen wird ein eindimensionales Modell des Membranstapels, in dem die Abtrennung stattfindet, modelliert und eine ideale, homogene Anströmung jedes Feedkanals angenommen. Die Reduktion der Membranfläche durch die Permeatrohre wird zur Vereinfachung nicht berücksichtigt. Der in Kapitel 2.5.3 vorgestellte membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess wird in Aspen Plus® abgebildet und simuliert. Parameter des Membranmoduls werden systematisch variiert, um den Einfluss der Parameter und der Modulgeometrie auf die Abtrennperformance zu untersuchen. Die gewonnenen Erkenntnisse dienen als Grundlage für die Auslegung der Membranmodule in beiden Trennstufen. Die Variation der Geometriegrößen wie beispielsweise die Kanalhöhen des Feed- und Permeatkanals ergeben andere hydrodynamische Bedingungen. Diese beeinflussen wiederum die Triebkraft der Permeation, sodass sich Auswirkungen auf die Abtrennperformance ergeben. Bei diesen Untersuchungen werden die in Kapitel 2.5.2 zusammengefassten Randbedingungen der Prozessauslegung berücksichtigt.

Bei der Modulauslegung in der vorliegenden Arbeit besteht ein Zielkonflikt zwischen der benötigten spezifischen Energie zur Abtrennung einer Tonne CO<sub>2</sub> und der für diese Abtrennung notwendigen Membranfläche. Entweder wird der Abtrenngrad durch eine erhöhte Triebkraft über der Membran bei gleichbleibender Membranfläche gesteigert oder die Membranfläche wird vergrößert, damit mehr der im Permeat erwünschten Komponente permeiert. Welche Maßnahme zum Erreichen eines bestimmten Abtrenngrades vorteilhaft ist, kann nicht direkt aus den Prozess- und Geometriedaten abgelesen werden, da die spezifische Energie und die Membranfläche nicht direkt miteinander verglichen werden können. Daher werden in der vorliegenden Arbeit die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten als universelle Vergleichsgröße verwendet.

## 3.2 Modellgrundlagen der Membrantechnik

Zur Auslegung des Membranmoduls müssen die wesentlichen Effekte, die die Abtrennperformance beeinflussen, modelliert werden. Zentrales Element der Modellierung von Membranprozessen ist die Permeationsgleichung, die die Permeationsrate der Komponente  $i$  durch die selektive Membran bestimmt. Die Permeationsraten werden durch Effekte wie Druckverlust und Konzentrationspolarisation gemindert, die in Kapitel 2.4.2 beschrieben werden. Im folgenden Kapitel werden die Modellgrundlagen für die Permeation, den Druckverlust und die Berücksichtigung der Konzentrationspolarisation in der Permeationsgleichung vorgestellt. Dabei werden die Teilmodelle jeweils für die Modellierung in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup> (ACM) und ANSYS<sup>®</sup> FLUENT<sup>®</sup> dargestellt. In ACM werden benutzerdefinierte Modelle programmiert, die anschließend für Prozessanalysen in Aspen Plus<sup>®</sup> genutzt werden. Bei den Strömungssimulationen in ANSYS<sup>®</sup> FLUENT<sup>®</sup> sind die Modelle für die Permeation und den Druckverlust in Spacer-gefüllten Kanälen ebenfalls von Bedeutung, da dies die Strömung im Modul beeinflusst. Außerdem werden durch die Modellierung der Permeation die Auswirkungen verschiedener Konfigurationen des Membranmoduls – und damit verschiedener Strömungsverhältnisse – in ANSYS<sup>®</sup> FLUENT<sup>®</sup> auf die Abtrennperformance untersucht.

### 3.2.1 Gaspermeation in Polymermembranen

Da Polyactive<sup>®</sup> eine dichte Polymermembran ist, werden die Gasmoleküle über den Lösungs-Diffusions-Mechanismus durch die Membran transportiert. Gasmoleküle werden an der feedseitigen Membranoberfläche absorbiert, diffundieren durch die Membran orthogonal zur Membranoberfläche in Richtung permeatseitiger Membranoberfläche und desorbieren dort. Die freien Räume zwischen benachbarten Molekülen der Polymermembran werden ab einer Größe von unter 1 nm nicht mehr Poren, sondern freies Volumen genannt [14; S. 303]. Die Diffusion durch die Polymermatrix ist ein stochastischer Prozess, der durch thermische Bewegungen der flexiblen Polyethylenoxid-Polymerketten und des gelösten Gasmoleküls stattfindet. Zwischen zwei freien Volumina entsteht kurzzeitig ein Korridor, der so groß ist, dass das Gasmolekül von einer freien Stelle zur nächsten diffundieren kann [14; S. 304]. Dabei finden im statistischen zeitlichen Mittel am häufigsten Bewegungen in die Richtung statt, die durch die Triebkraft vorgegeben wird. Zur Beschreibung der Gaspermeation in Polymermembranen mittels des Lösungs-Diffusions-Modells werden folgende Annahmen zugrunde gelegt [18, S. 79]:

- Die Membran wird als kontinuierliche reale Flüssigkeit aufgefasst.
- Es herrscht chemisches Gleichgewicht an den Phasengrenzen zwischen Membranoberfläche und angrenzenden Fluidphasen. Somit ist das elektrochemische Potential  $\mu_i$  der Komponente  $i$  im gelösten Zustand an der Membranoberfläche und in der angrenzenden Fluidphase gleich ( $\mu_{MR,i} = \mu_{R,i}$ ;  $\mu_{MP,i} = \mu_{P,i}$ ).
- Die Permeatflüsse verschiedener Komponenten sind nicht gekoppelt.

Als universelle Triebkraft aller Permeationsprozesse von Molekülen und Ionen durch dichte Membranen gilt die Differenz im elektrochemischen Potential  $\mu_{M,i}$  über die Membrandicke in z-Richtung [18, S. 10]. Weiterhin hängt die Permeationsrate<sup>6</sup> der Komponente  $i$   $\dot{n}_{M,i}''$  von deren Gleichgewichtskonzentration im gelösten Zustand in der Membran  $c_{M,i}$  und der Molekülbeweglichkeit in der Membran  $b_{M,i}$  ab. Allgemein lässt sich die flächenspezifische Permeationsrate der Komponente  $i$  durch die Membran durch Gl. 3-1 ausdrücken [18, S. 79].

$$\dot{n}_{M,i}'' = -c_{M,i} \cdot b_{M,i} \cdot \frac{\partial \mu_{M,i}}{\partial z} \quad \text{Gl. 3-1}$$

Die Konzentration in der Membran hängt von Druck, Temperatur und der Zusammensetzung der umgebenden Polymerphase ab. Dieser Zusammenhang wird über Sorptionsisothermen beschrieben. Für niedrige Konzentrationen kann ein linearer Sorptionsansatz gemäß dem Henry'schen Gesetz aus Gl. 3-2 zur Beschreibung gewählt werden. Der Beweglichkeitsparameter  $b_{M,i}$  wird durch die Nernst-Einstein-Gleichung gemäß Gl. 3-3 in Beziehung zum thermodynamischen Diffusionskoeffizienten  $D_{M,i}^0$  gebracht.

$$c_{M,i} = S_i \cdot a_{M,i} \quad \text{Gl. 3-2}$$

$$D_{M,i}^0 = R \cdot T \cdot b_{M,i} \quad \text{Gl. 3-3}$$

Hierbei sind  $S_i$  der Sorptionskoeffizient und  $a_i$  die Aktivität der Komponente  $i$ ,  $R$  die universelle Gaskonstante und  $T$  die Temperatur. Das elektrochemische Potential  $\mu_i$  einer realen, gasförmigen Komponente  $i$  in einem realen Gemisch setzt sich gemäß Gl. 3-4 zusammen aus dem chemischen Potential der realen, reinen Komponente  $i$   $\mu_i^0$ , einem Ausdruck zur Beschreibung der realen Mischung und einem Anteil für die elektrische Energie [19]. Bei dieser Definition wird ausgenutzt, dass der Standardzustand, der mit '0' indiziert ist, frei wählbar ist und hier als das chemische Potential der realen, reinen Komponente  $i$  gewählt wird [72, S. 122].

$$\mu_i = \underbrace{\mu_i^0}_{\text{reale, reine Komp.}} + \underbrace{R \cdot T \cdot \ln a_i}_{\text{Mischung}} + \underbrace{z_i \cdot F \cdot \varphi}_{\text{el. Energie}} \quad \text{Gl. 3-4}$$

Im Term für die elektrische Energie steht  $z_i$  für die Ladungszahl des Ions der Komponente  $i$ ,  $F$  ist die Faraday-Konstante und  $\varphi$  das elektrische Potential. Da bei der Trennung des CO<sub>2</sub> vom Kraftwerksrauchgas keine elektrisch geladenen Teilchen durch Anlegung eines elektrischen Feldes voneinander getrennt werden, entfällt der Term für die elektrische Energie. Unter der Annahme, dass sich das chemische Potential der realen, reinen Komponente  $i$   $\mu_i^0$  über die Membrandicke nicht ändert, ergibt sich mit Gl. 3-2 bis Gl. 3-4 eingesetzt in Gl. 3-1 der folgende Ausdruck für die flächenspezifische Permeationsrate – auch Flux genannt:

$$\dot{n}_{M,i}'' = -S_i \cdot a_i \cdot \frac{D_{M,i}^0}{R \cdot T} \cdot \frac{\partial (R \cdot T \cdot \ln a_i)}{\partial z} = -S_i \cdot D_{M,i}^0 \cdot \frac{\partial (a_i)}{\partial z} \quad \text{Gl. 3-5}$$

$$\dot{n}_{M,i}'' \approx -S_i \cdot D_{M,i}^0 \cdot \frac{a_{PM,i} - a_{FM,i}}{\delta_M} \quad \text{Gl. 3-6}$$

<sup>6</sup> Im Folgenden werden flächenspezifische Größen wie die Permeationsrate, die als der auf die Fläche bezogene Permeationsstrom einer Komponente  $i$  durch die Membran definiert ist, mit zwei hochgestellten Strichen gekennzeichnet.

Weiterhin wird angenommen, dass die Temperaturänderung über der Membrandicke aufgrund des Joule-Thomson-Effekts bei der CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas vernachlässigbar ist [15]. Die Integration von Gl. 3-5 führt unter der Voraussetzung, dass sich die Aktivität linear über die Membrandicke  $\delta_M$  ändert, zu Gl. 3-6.  $a_{PM,i}$  und  $a_{FM,i}$  sind die Aktivitäten des Gasgemisches direkt an der Membranoberfläche auf der Permeat- und Feedseite.

Allgemein ist die Aktivität der Komponente  $i$  gemäß Gl. 3-7 definiert als Quotient der Fugazität  $f_i$  und der Fugazität in einem frei wählbaren Standardzustand  $f_i^0$  [72, S. 122]. Dieser Standardzustand wird so gewählt, dass diese Standardfugazität einem Bezugs- bzw. Standarddruck  $p^0$  entspricht. Die Fugazität wiederum ist ein um den Fugazitätskoeffizienten  $\varphi_i$  korrigierter Partialdruck für reale Gase [72, S. 66 und S. 122].

$$a_i = \frac{f_i}{f_i^0} = \frac{\varphi_i \cdot p \cdot x_i}{p^0} \quad \text{Gl. 3-7}$$

Da die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas bei Drücken unter 10 bar abläuft, können die Gasgemische auf der Feed- und Permeatseite näherungsweise als ideale Gase betrachtet werden. Somit gilt für den Fugazitätskoeffizienten jeweils  $\varphi_{F,i} = \varphi_{P,i} = 1$ . Damit ergibt sich Gl. 3-8 für die auf die Membranfläche bezogene molare Permeationsrate der Komponente  $i$ .

$$\dot{n}_{M,i}'' = \frac{S_i \cdot D_{M,i}^0}{\delta_M \cdot p^0} \cdot (p_F \cdot x_{FM,i} - p_P \cdot x_{PM,i}) = L_i \cdot (p_F \cdot x_{FM,i} - p_P \cdot x_{PM,i}) \quad \text{Gl. 3-8}$$

$$P_i = \frac{S_i \cdot D_{M,i}^0}{p^0} \quad \text{und} \quad L_i = \frac{P_i}{\delta_M}$$

Die Partialdruckdifferenz der Komponente  $i$  zwischen Feed und Permeat bildet die Triebkraft des Flux dieser Komponente in der Gaspermeation. Als Materialparameter, der unabhängig von der Membrandicke ist, beschreibt die Permeabilität  $P_i$  als Produkt aus Sorptions- und Diffusionskoeffizient die Gasdurchlässigkeit der Komponente  $i$  für ein bestimmtes Membranmaterial. Der komplette Term vor der Triebkraft wird zur membran-spezifischen Permeanz  $L_i$  zusammengefasst, in der die Membrandicke berücksichtigt ist. In der vorliegenden Arbeit wird angenommen, dass die Sorptions- und Diffusionskoeffizienten und damit die Permeanzen der Komponenten unabhängig von der Temperatur sind.

### Modellierung der Permeation in Aspen Custom Modeler®

Zur Modellierung des Membranmoduls in Aspen Custom Modeler® (ACM) wird ein eindimensionales Ersatzmodell des Membranmoduls erstellt. Das Membranmodul wird hierzu über die Lauflänge in  $N$  Zellen unterteilt, wie in Abbildung 3-1 dargestellt ist. Wenn nicht anders erwähnt, werden in der vorliegenden Arbeit 50 Zellen für die Diskretisierung verwendet. Eine Verfeinerung der räumlichen Auflösung bringt selbst bei einem Membranmodul mit einer Länge von zehn Metern keine wesentlich genaueren Ergebnisse [73]. Somit kann für jede Zelle die Permeationsgleichung gemäß Gl. 3-9 angewandt werden. Hierbei werden die sich über die Lauflänge ändernden Faktoren der Triebkraft für jede Zelle  $k$  des diskretisierten Fluidraums einzeln berechnet.

$$\dot{n}_{M,i,k} = L_i \cdot \frac{A_M}{N_{\text{Zellen}}} \cdot (p_{F,k} \cdot x_{FM,i,k} - p_{P,k} \cdot x_{PM,i,k}) \quad \text{Gl. 3-9}$$

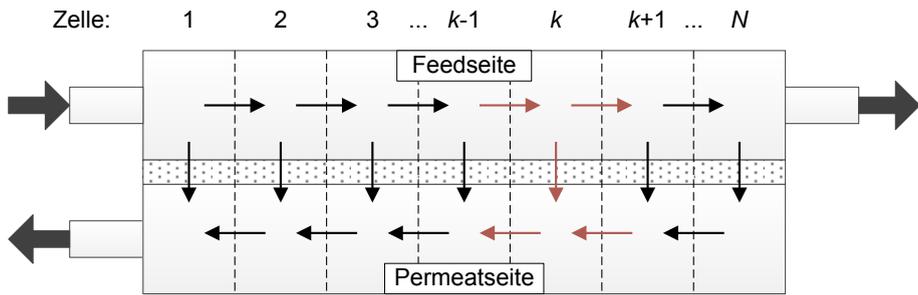


Abbildung 3-1: Diskretisierung des Membranmoduls in Zellen in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup>; schwarze Pfeile zeigen Stoffströme am Übergang zwischen zwei Zellen; rote Pfeile zeigen Stoffströme, die in die Stoffmengenbilanz der Zelle  $k$  auf der Feed- beziehungsweise Permeatseite eingehen; in Anlehnung an [74]

Die Membranfläche der Zelle  $k$ , durch die der Stoffmengenstrom  $\dot{n}_{M,i,k}$  permeiert, wird über das Verhältnis der gesamten Membranfläche des Membranmoduls  $A_M$  und der Anzahl der Zellen  $N_{\text{Zellen}}$  bestimmt. Der Druck auf der Feedseite in Zelle  $k - p_{F,k}$  wird über den Druckverlust innerhalb der Zelle  $k-1$  und dem Druck der Zelle  $k-1$  bestimmt. Der Druck auf der Feedseite vor der ersten Zelle  $p_{F,0}$  entspricht dem Druck der Eintrittsströmung. Analog wird auch der Druck auf der Permeatseite für jede Zelle berechnet. Die Stoffmengenanteile der Komponente  $i$  an der Membranoberfläche  $x_{FM,i,k}$  und  $x_{PM,i,k}$  werden über das Modell für die Konzentrationspolarisation aus Kapitel 3.2.2 ermittelt. Für die Permeanz  $L_i$  wird ein fester Wert für jede Komponente  $i$  angenommen. Die Werte für die Permeanz  $L_i$  werden der Tabelle 2-1 entnommen und zuvor über das molare Volumen bei Standardbedingungen in Stoffmengenwerte umgerechnet. Der Permeationsstrom bewirkt eine Abnahme der Stoffmenge im Feed und eine gleich große Zunahme an Stoffmenge im Permeat. Daher wird für jede Komponente  $i$  die Stoffmengenbilanz auf der Feed- und Permeatseite in jeder Zelle aufgestellt. Für Zelle  $k$  gehen die in Abbildung 3-1 rot markierten Stoffströme gemäß Gl. 3-10 beziehungsweise Gl. 3-11 in die Stoffmengenbilanz ein. Die Indizierung der Stoffströme orientiert sich an der Zelle, aus der der Stoffstrom in die nächste Zelle strömt. Wenn das Membranmodul im Gegenstrom betrieben wird, wird gemäß Gl. 3-11 zu dem Stoffstrom aus Zelle  $k+1$  der Permeationsstrom aus Zelle  $k$  addiert. Wird das Membranmodul dagegen im Gleichstrom betrieben, ändert sich die Strömungsrichtung und damit die Stoffmengenbilanz auf der Permeatseite. Dann wird zu dem Stoffstrom aus Zelle  $k-1$  der Permeationsstrom aus Zelle  $k$  addiert. Analoge Bilanzen ergeben sich für die Stoffmengenbilanz der Komponente  $i$  mit dem Unterschied, dass nur der Permeationsstrom der Komponente  $i$  vom Feedstrom dieser Komponente subtrahiert und zum Permeatstrom der gleiche Komponente addiert wird.

$$\dot{n}_{F,k-1} = \dot{n}_{F,k} + \sum_i \dot{n}_{M,i,k} \quad \text{Gl. 3-10}$$

$$\dot{n}_{P,k} = \dot{n}_{F,k+1} + \sum_i \dot{n}_{M,i,k} \quad \text{Gl. 3-11}$$

### Modellierung der Permeation in ANSYS<sup>®</sup> FLUENT<sup>®</sup>

Da die Kompositmembran mit Polyactive<sup>®</sup> als trennaktiver Schicht und PDMS/PAN als Stützschiicht eine Gesamtdicke  $< 100 \mu\text{m}$  hat, wird sie in ANSYS<sup>®</sup> FLUENT<sup>®</sup> als zweidimensionale Fläche approximiert. Bei der Geometrieerstellung und anschließenden Vernetzung wird sie

als undurchlässige Wand abgebildet, die die Fluidräume von Feed und Permeat räumlich trennt. Erst durch die Implementierung einer benutzerdefinierten Funktion (UDF) kann die Permeation durch diese Wand modelliert werden. Die Methodik dieser UDF wird in Abbildung 3-2 dargestellt.

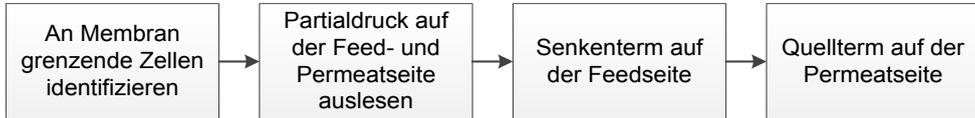


Abbildung 3-2: Methodik der benutzerdefinierten Funktion zur Modellierung der Permeation in ANSYS® FLUENT®

Ein Zeiger läuft entlang aller Membranflächen und identifiziert die direkt an die Membran angrenzenden Zellen auf der Feed- und Permeatseite. Dazu werden alle Membranflächen zuvor zu einem neuen Element mit einer einzelnen Identifikationsnummer zusammengefasst, damit die UDF anhand dieser Nummer alle Membranflächen erkennt. Aus den Zellen auf der Feed- und Permeatseite liest die UDF die Stoffmengenanteile der Komponenten und den Gesamtdruck aus und berechnet die Partialdrücke der Komponenten auf beiden Seiten der Membran. Über die Partialdrücke wird die lokale Triebkraft jeder Komponente bestimmt. Mit der Triebkraft ergibt sich die volumenbezogene Permeationsrate gemäß Gl. 3-12.

$$\dot{m}_{M,i,k}''' = L_i \cdot \frac{A_{M,k}}{V_k} \cdot \left( p_{F,k} \cdot x_{FM,i,k} - p_{P,k} \cdot x_{PM,i,k} \right) \quad \text{Gl. 3-12}$$

In Gl. 3-12 steht  $A_{M,k}$  für die Fläche jeder Zelle  $k$ , die auf der Membranoberfläche liegt. Die Werte für die Permeanz  $L_i$  werden der Tabelle 2-1 entnommen und zuvor über die Normdichten der Komponenten in Massenwerte umgerechnet. Da in ANSYS® FLUENT® nur Quellen und Senken von Massen-, Impuls- und Energiedichten mittels UDF definiert werden können, sind die Permeationsraten auf das Volumen  $V_k$  der Zelle  $k$  zu beziehen. Mit den berechneten volumenbezogenen Permeationsraten werden auf der Feedseite Massensenken und auf der Permeatseite gleich große Quellen definiert.

Analog wird auch der Enthalpiestrom, der aufgrund der Permeation von der Feed- zur Permeatseite stattfindet, auf das Volumen der Zelle bezogen. Die Enthalpieströme werden gemäß Gl. 3-13 über die auf der Feedseite ausgelesenen Enthalpien jeder Zelle und der aus dieser Zelle übertragenen Gesamtmasse bestimmt. Daraufhin werden eine Energiesenke auf der Feedseite und eine Energiequelle auf der Permeatseite der Energiebilanz hinzugefügt.

$$\dot{E}_{M,k}''' = h_{F,k} \cdot \dot{m}_{M,k}''' \quad \text{Gl. 3-13}$$

Impulsquellen und –senken werden nicht berechnet, da die Geschwindigkeit an der Membranoberfläche aufgrund der Wandhaftung gering ist und die Stoffübertragung von der Feedseite auf die Permeatseite diffusiv erfolgt.

Zusätzlich wird in der UDF der  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad bestimmt. Dazu werden die  $\text{CO}_2$ -Massenströme jedes Permeatausgangs berechnet, aufsummiert und durch den  $\text{CO}_2$ -Massenstrom im Feed geteilt. Hierzu sind  $\text{CO}_2$ -Massenanteile und Gesamtmassenströme an den jeweiligen Ein- und Austrittsflächen mittels UDF auszulesen.

### 3.2.2 Konzentrationspolarisation in Spacer-gefüllten Kanälen

Der Stoffmengenanteil der Komponente  $i$  an der Membranoberfläche, der die Triebkraft der Permeation durch die Membran beeinflusst, wird über die Stoffmengenbilanz in der Konzentrationsgrenzschicht auf der Feed- beziehungsweise Permeatseite der Membranoberfläche bestimmt. Die allgemeine differentielle Stoffmengenbilanz der Komponente  $i$  einer Mischung für ein Volumenelement lautet [75, S. 584]:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \nabla(c_i \cdot v) + \nabla J_i'' = R_i^V \quad \text{Gl. 3-14}$$

In Gl. 3-14 steht  $c_i$  für die Konzentration der Komponente  $i$ ,  $v$  für die Schwerpunktschwindigkeit und  $J_i''$  für den molaren Diffusionsstrom pro Flächeneinheit. Der volumenbezogene Reaktionsterm  $R_i^V$  auf der rechten Seite der Gleichung fällt weg, da keine chemischen Reaktionen stattfinden. Wenn nicht anders erwähnt, werden zudem nur stationäre Prozesse betrachtet, sodass der erste Term auf der linken Seite der Gleichung, der die zeitliche Änderung der Konzentration der Komponente  $i$  ausdrückt, wegfällt.

#### Modellierung der Konzentrationspolarisation in Aspen Custom Modeler®

Aufgrund der in Kapitel 2.4.2 beschriebenen Konzentrationsgradienten orthogonal zur Membran müssen Diffusionsprozesse in dieser Richtung berücksichtigt werden. Die membranparallelen Konzentrationsgradienten sind vernachlässigbar klein gegenüber den membranorthogonalen Konzentrationsgradienten, sodass bei der Modellierung in ACM nur Diffusionsströme orthogonal zur Membran angenommen werden. Unter der Voraussetzung, dass die Konzentrationsgrenzschicht viel kleiner als die Geschwindigkeitsgrenzschicht ist [76, S. 91], wird in ACM weiterhin angenommen, dass die membranparallele Geschwindigkeitskomponente vernachlässigbar klein ist. Mit  $z$  als der membranorthogonalen Komponente des Ortsvektors und  $v_z$  als die membranorthogonale Geschwindigkeitskomponente ergibt sich die in Gl. 3-15 angegebene Bilanz für die Stoffmenge der Komponente  $i$ :

$$\frac{\partial c_i \cdot v_z}{\partial z} + \frac{\partial J_i''}{\partial z} = 0 \quad \text{Gl. 3-15}$$

Weiterhin wird im Folgenden davon ausgegangen, dass diffusive Transportprozesse im Gasgemisch ausschließlich durch molekulare Diffusion – hervorgerufen durch Gradienten im chemischen Potential  $(\nabla \mu_i)_{T,p}$  – stattfinden. Die molekulare Diffusion für ein Mehrkomponentengemisch wird allgemein durch die in Gl. 3-16 angegebenen Maxwell-Stefan-Gleichungen beschrieben [77].

$$\frac{x_i}{RT} \cdot (\nabla \mu_i)_{T,p} = \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x_j \cdot J_j'' - x_j \cdot J_i''}{c_t \cdot \mathcal{D}_{ij}} \quad \text{Gl. 3-16}$$

Hierbei steht  $c_t$  für die Gesamtkonzentration des Stoffgemisches und  $\mathcal{D}_{ij}$  repräsentiert den Maxwell-Stefan-Diffusionskoeffizienten einer binären Mischung der Komponenten  $i$  und  $j$ . Die Summe aller Diffusionsströme ist definitionsgemäß null, sodass bei  $n$  Stoffkomponenten im System nur  $n-1$  unabhängige Maxwell-Stefan-Gleichungen existieren. Daher werden im Folgenden die Diffusionsströme von Argon über die Schließbedingung aus Gl. 3-17 errechnet.

$$J_{\text{Ar}}'' = - \sum_{j, j \neq \text{Ar}} J_j'' \quad \text{Gl. 3-17}$$

Da die Maxwell-Stefan-Gleichungen die Diffusionsströme implizit enthalten, werden die Diffusionsströme für das Einsetzen in die Stoffmengenbilanz der Komponente  $i$  mit dem verallgemeinerten Fick'schen Gesetz, Gl. 3-18, beschrieben [75; 77]. Die dafür notwendige Umrechnung der Maxwell-Stefan-Diffusionskoeffizienten einer binären Mischung  $\mathcal{D}_j$  in Diffusionskoeffizienten eines Mehrkomponentengemischs  $D_{ij}$ , die in dem verallgemeinerten Fick'schen Gesetz in der Matrix  $[D]$  eingesetzt werden, wird im Anhang 8.4 erläutert.

$$\vec{J}'' = -c_t \cdot [D] \cdot \nabla \vec{x} \quad \text{Gl. 3-18}$$

Der Vektor  $\vec{J}''$  enthält die molbezogenen Diffusionsströme der Komponenten, die Matrix  $[D]$  die Diffusionskoeffizienten des verallgemeinerten Fick'schen Gesetzes und  $\nabla \vec{x}$  die Gradienten der Stoffmengenanteile. Der Gradient der Stoffmengenanteile wird als konstant über die Dicke der Konzentrationsgrenzschicht angenommen, sodass er über den Differenzenquotienten aus Gl. 3-19 angenähert wird. Auch hier gilt, dass nur Diffusionsströme orthogonal zur Membran – also in z-Richtung – angenommen werden.

$$\nabla x_i = \frac{\partial x_i}{\partial z} \approx \frac{\Delta x_i}{\Delta z} = \frac{\Delta x_i}{\delta_{GS}} \quad \text{Gl. 3-19}$$

Da die Dicke der Konzentrationsgrenzschicht  $\delta_{GS}$  unbekannt ist, werden statt der Diffusionskoeffizienten Stoffübergangskoeffizienten  $k_{ij}$  zur Beschreibung der Ausgleichströmung verwendet. Der Stoffübergang bezeichnet die Stoffübertragung zwischen zwei Phasen über eine Phasengrenze – hier von der Gasphase in die Membran [75]. Der Stoffübergangskoeffizient ist damit nach Gl. 3-21 definiert als Verhältnis von Permeationsrate  $\dot{n}_i''$  und treibender Konzentrationsdifferenz zwischen Phasengrenze und einem Ort in hinreichend großem Abstand zur Phasengrenze  $\Delta c_i$  [75, S. 675; 78, S. 55]. Eine weitere Definition des Stoffübergangskoeffizienten setzt die Annahme eines rein diffusiven Stofftransports innerhalb der Konzentrationsgrenzschicht analog zum Fluidfilm in der Filmtheorie voraus [78, S. 274]. Unter Anwendung des ersten Fickschen Gesetzes gemäß Gl. 3-20 ermöglicht dies – wie in Gl. 3-21 beschrieben – die Definition des Stoffübergangskoeffizienten als Verhältnis aus Diffusionskoeffizient  $D_{ij}$  und Grenzschichtdicke  $\delta_{GS}$  [18, S. 122; 78, S. 275].

$$\dot{n}_i'' = D_{ij} \cdot \frac{\Delta c_i}{\delta_{GS}} \quad \text{Gl. 3-20}$$

$$k_{ij} = \frac{\dot{n}_i''}{\Delta c_i} = \frac{D_{ij}}{\delta_{GS}} \quad \text{Gl. 3-21}$$

Die Terme der Gl. 3-15 werden über die Dicke der Konzentrationsgrenzschicht  $\delta_{GS}$  integriert. Für die konvektiven Ströme gelten die bereits in Kapitel 3.2.1 beschriebenen flächenspezifischen Stoffmengenströme. Am Ende der Konzentrationsgrenzschicht entspricht der konvektive Strom der gesamten Permeationsrate  $\dot{n}_M''$  gewichtet mit dem Stoffmengenanteil der Komponente  $i$  in der Hauptströmung  $x_{FB,i}$ . An der Membranoberfläche entspricht der konvektive Strom der Permeationsrate der Komponente  $i$   $\dot{n}_{M,i}''$ . Damit ergibt sich die Stoffmengenbilanz im Volumenelement in der feedseitigen Konzentrationsgrenzschicht nach Gl. 3-22. Aufgrund der Bedingung, dass die Summe aller Stoffmengenanteile eins ergeben muss, sind die Stoffmengenbilanzen linear abhängig voneinander [79]. Daher wird mit Gl. 3-22 der Stoffmengenanteil  $x_{FM,j}$  der Komponente  $j$  für alle Stoffkomponenten des Feedgemisches außer Argon bestimmt. Der Stoffmengenanteil von Argon an der Membranoberfläche ergibt sich aus der oben genannten Bedingung. Dieser Modellierungsansatz ist ebenfalls vorteilhaft für eine stabilere Berechnung, da die implizite Gl. 3-22 nur für vier Komponenten ausgewertet

werden muss. Eine analoge Bilanzgleichung gilt auch für die Konzentrationsgrenzschicht auf der Permeatseite.

$$\dot{n}_{M,i}'' - x_{FB,i} \cdot \sum_{j=1}^n \dot{n}_{M,j}'' - c_t \cdot \sum_{j=1}^{n-1} k_{ij} \cdot (x_{FB,j} - x_{FM,j}) = 0 \quad \forall i \in \{\text{CO}_2, \text{N}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{O}_2\} \quad \text{Gl. 3-22}$$

Der Stoffübergangskoeffizient kann nicht direkt über Gl. 3-21 berechnet werden, falls die Dicke der Konzentrationsgrenzschicht nicht bekannt ist. Er ist abhängig vom strömenden Medium und den Strömungsbedingungen. Diese Abhängigkeit wird in einer dimensionslosen Sherwood-Korrelation nach Gl. 3-23 ausgedrückt, wobei die Matrix der Sherwood-Zahlen als Funktion der Reynoldszahl und der Matrix der Schmidt-Zahlen angegeben wird [80]. Für ein Zweistoffgemisch vereinfacht sich Gl. 3-23 zu einer skalaren Gleichung.

$$[Sh] = \gamma_1 \cdot Re^{\gamma_2} \cdot [Sc]^{\gamma_3} \quad \text{Gl. 3-23}$$

Die dimensionslosen Kennzahlen sind nach Gl. 3-24 bis Gl. 3-26 definiert. Dabei wird die Reynoldszahl in der Literatur mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten und Längengrößen gebildet [47]. Diese können jedoch ineinander überführt werden. In der vorliegenden Arbeit wird sie – wenn nicht anders angegeben – mit der physikalischen Geschwindigkeit  $v$  und dem hydraulischen Durchmesser  $d_h$  über Gl. 3-25 berechnet.

$$[Sh] = \frac{[k] \cdot d_h}{[D]} \quad \text{Gl. 3-24}$$

$$Re = \frac{\rho \cdot v \cdot d_h}{\eta} \quad \text{Gl. 3-25}$$

$$[Sc] = \frac{\eta}{[D] \cdot \rho} \quad \text{Gl. 3-26}$$

Die Parameter  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  und  $\gamma_3$  aus Gl. 3-23 sind positiv und werden aus experimentellen Daten gewonnen. Sie sind abhängig von der jeweiligen Geometrie des Spacers. In der vorliegenden Arbeit werden die Kennzahl-Beziehungen aus Gl. 3-27 oder Gl. 3-28 zugrunde gelegt, die aus Untersuchungen mit verschiedenen Spacern ermittelt wurden. Melin gibt gemäß Gl. 3-27 eine allgemeingültige Kennzahl-Beziehung an, die unabhängig vom verwendeten Spacer gültig ist, gibt hierfür jedoch keine Fehlerabschätzung an [18, S. 147]. Die Korrelation von Da Costa sagt gemäß Gl. 3-28 den Stoffübergang mit einer Abweichung von weniger als 10 % vorher [50]. Sie ermöglicht die Berechnung des Parameters  $\gamma_1$  aus Gl. 3-23 explizit in Abhängigkeit der Spacergeometrie – also der Filamentlänge  $l_F$ , des Filamentdurchmessers  $d_F$  und des Winkels zwischen den Filamenten unterschiedlicher Orientierung  $\alpha$  [50].

**Melin [18, S. 147]:** Gl. 3-27

$$[Sh] = 0,065 \cdot Re^{0,875} \cdot [Sc]^{0,25}$$

**Da Costa [50]:**

$$[Sh] = 1,098 \cdot \left( \frac{d_F}{h_{\text{Kanal}}} \right)^{-0,039} \cdot \varepsilon^{0,75} \cdot \left( \sin \frac{\alpha}{2} \right)^{0,086} \cdot \left( \frac{2 \cdot d_h}{l_F} \right)^{0,5} \cdot Re^{0,5} \cdot [Sc]^{0,33} \quad \text{Gl. 3-28}$$

Gl. 3-24 bis Gl. 3-26 eingesetzt in Gl. 3-27 oder Gl. 3-28 und Umstellung nach der Matrix der gesuchten Stoffübergangskoeffizienten  $[k]$  ergibt eine Abhängigkeit der Matrix  $[k]$  gemäß Gl. 3-29 von der Matrix der Diffusionskoeffizienten  $[D]$ , welche mit einem reellen Exponenten  $x_{\text{reell}}$  potenziert ist, und von einem Vorfaktor  $VF$ .

$$[k] = VF \cdot [D]^{X_{\text{real}}} \quad \text{Gl. 3-29}$$

Die Lösung dieser Gleichung wird im Anhang 8.5 erläutert. Die  $k_{ij}$  werden in die Stoffmengenbilanz aus Gl. 3-22 eingesetzt, sodass mit dieser Bilanz die Stoffmengenanteile an der Membranoberfläche bestimmt werden können. Diese Stoffmengenanteile eingesetzt in die Permeationsgleichung nach Gl. 3-8 ergeben die Permeationsströme unter Berücksichtigung der Konzentrationspolarisation. Diejenige Sherwood-Korrelation, die den höheren Einfluss auf die Triebkraft hat, wird in der vorliegenden Arbeit verwendet, um eine konservative Abschätzung der Abtrennperformance zu erhalten. Die Auswahl wird in Kapitel 5.2.2 getroffen.

### Modellierung der Konzentrationspolarisation in ANSYS® FLUENT®

In ANSYS® FLUENT® wird statt der Stoffmengenbilanz die Massenbilanz einer Zelle direkt an der Membranoberfläche gelöst. Da ANSYS® FLUENT® die Fluidräume auf der Feed- und Permeatseite dreidimensional auflöst und mit der räumlichen Diskretisierung in Volumenelemente unterteilt, werden in der Massenbilanz auch die Gradienten in allen drei Raumrichtungen berücksichtigt, sodass sich analog zur Gl. 3-15 die Massenbilanz in der Konzentrationsgrenzschicht gemäß Gl. 3-30 ergibt.

$$\nabla(\rho_i \cdot v) + \nabla j_i'' = 0 \quad \text{Gl. 3-30}$$

Hierbei steht  $\rho_i$  für die Partialdichte der Komponente  $i$ ,  $v$  für die Schwerpunktgeschwindigkeit und  $j_i''$  kennzeichnet den massenbezogenen Diffusionsstrom. Die molbezogenen Diffusionsströme werden aus dem verallgemeinerten Fick'schen Gesetz aus Gl. 3-18 bestimmt und über die Molmasse in die massenbezogenen Diffusionsströme  $j_i''$  umgerechnet. Die Gradienten der Stoffmengenanteile der Komponente  $i$  werden jedoch nicht wie in Gl. 3-19 als linear zwischen Membranoberfläche und Ende der Konzentrationsgrenzschicht angenommen, sondern in jeder Zelle exakt ausgewertet. Damit entfällt die Bestimmung der Stoffübergangskoeffizienten mittels der Sherwood-Korrelationen. Allerdings ist zu berücksichtigen, dass in ANSYS® FLUENT® die Maxwell-Stefan-Diffusionskoeffizienten  $\mathcal{D}_{ij}$  mit der in Anhang 8.4 erläuterten Vereinfachung berechnet werden, die eine Abweichung von den realen  $\mathcal{D}_{ij}$  um ca. 3 % bedeuten.

### 3.2.3 Druckverlust im Membranmodul und Verteilsystem

Druckverlust bezeichnet die irreversible Änderung des Druckes durch Wandreibung und innere Reibung beziehungsweise Verwirbelung [33]. Allgemein wird der Druckverlust auf den dynamischen Druck bezogen, wie in Gl. 3-31 dargestellt.

$$\Delta p = \frac{\rho \cdot \bar{v}^2}{2} \cdot \left( \lambda \cdot a + \sum_i \zeta_i \right) \quad \text{Gl. 3-31}$$

Der erste Term in der Klammer repräsentiert den Druckverlust durch Wandreibung. Bei einfacher Rohrströmung ist der Faktor  $a$  das Verhältnis von Rohrlänge zum hydraulischen Durchmesser. Die Rohrreibungszahl  $\lambda$  ist bei laminarer Strömung in erster Näherung nur abhängig von der Reynoldszahl während bei turbulenter Strömung die Wandraugigkeit als Einflussgröße hinzukommt. Einbauten im durchströmten Hohlraum, die die Richtung der Stromlinien ändern, sorgen für zusätzliche innere Reibung zwischen den Fluidteilchen und für eine Verwirbelung der Strömung. Der durch Bauteil  $i$  verursachte Druckverlust wird über den Widerstandsbeiwert  $\zeta_i$  repräsentiert. Er ist für Einbauten wie Ventile, Klappen und weitere Bauteile aus Tabellenwerken zu entnehmen oder experimentell zu bestimmen. Falls – wie

in der Literatur üblich – dieser Widerstandsbeiwert den gesamten und nicht nur den Druckverlust zusätzlich zur Wandreibung angibt, muss in Gl. 3-31 der Faktor  $a$  bei Einbauten zu null gesetzt werden.

Strömungen in Membranmodulen mit Flachmembranen haben den weitaus größten Anteil an Druckverlust in den Spacer-gefüllten Kanälen. Dabei sind Spacer wie zusätzliche Einbauten im Strömungskanal zu behandeln. Die Abtrennperformance des Moduls hängt wesentlich von den membranparallelen Druckverlusten auf der Feed- und Permeatseite ab, da die Triebkraft der Permeation, wie in Kapitel 3.2.1 erläutert, die Partialdruckdifferenz ist.

Die in Kapitel 2.4.2 beschriebenen Druckverlust-Komponenten in Spacer-gefüllten Kanälen werden in einer allgemeinen Bestimmungsgleichung gemäß Gl. 3-32 zusammengefasst. Der Druckverlust  $\Delta p$  pro durchströmte Kanallänge  $l$  ist analog zum ersten Term der Gl. 3-31 proportional zum dynamischen Druck  $p_{\text{dyn}}$ . Laut Gl. 3-32 ist die Proportionalitätskonstante statt der Rohrreibungszahl  $\lambda$  hierbei der Widerstandsbeiwert  $\zeta$ , welcher Spacer-spezifisch in der über Gl. 3-33 gegebenen Abhängigkeit zur Reynoldszahl gesetzt wird [50]. Anders als bei der Druckverlustberechnung für Bauteile, bei der der Gesamtdruckverlust zwischen Anfang und Ende des Bauteils ohne Berücksichtigung der Länge bestimmt wird, wird der Druckverlust in Spacer-gefüllten Kanälen auf die Kanallänge  $l$  bezogen. Für die korrekte Dimensionierung geht daher zusätzlich der hydraulische Durchmesser  $d_h$  des Spacer-gefüllten Kanals in die Druckverlustcharakteristik ein. Für den in der vorliegenden Arbeit angenommenen Spacer gelten – wenn nicht anders erwähnt – die experimentell ermittelten Parameter  $A = 44$  und  $b = -0,55$  für Gl. 3-33 [81].

$$\frac{\Delta p}{l} = -p_{\text{dyn}} \cdot \frac{\zeta}{d_h} = -\frac{\zeta \cdot \rho \cdot \bar{v}^2}{2 \cdot d_h} \quad \text{Gl. 3-32}$$

$$\text{mit } \zeta = A \cdot Re^b \quad \text{Gl. 3-33}$$

#### Modellierung des Druckverlustes in Aspen Custom Modeler®

Für die Modellierung des Druckverlustes in Aspen Custom Modeler® werden Gl. 3-32 und Gl. 3-33 direkt verwendet. Dabei entspricht die Länge  $l$  der Länge einer Zelle gemäß Abbildung 3-1. Die so berechnete Druckdifferenz ist der Druckverlust zwischen zwei benachbarten Zellen. Die zur Berechnung notwendige Überströmungsgeschwindigkeit ergibt sich aus dem Massenstrom, der Fluidichte und der Kanalgeometrie. Der hydraulische Durchmesser wird über Gl. 2-11 beziehungsweise Gl. 2-12 ermittelt.

#### Modellierung des Druckverlustes in ANSYS® FLUENT®

Zur korrekten Bestimmung des realen Abtrenngrades in den CFD-Simulationen muss der durch die Spacer verursachte Druckverlust abgebildet werden. Dazu wird in der vorliegenden Arbeit ein Ersatzmodell in ANSYS® FLUENT® entwickelt, welches in Kapitel 4.1.2 vorgestellt wird.

Die Druckverluste in den Anschlussrohren haben einen Einfluss auf die Wahl der Modulanzahl und die Modulverschaltung, sodass die Druckverluste in den Rohrleitungen mit Gl. 3-31 abgeschätzt werden. Je nach Strömungsform und relativer Rauigkeit des Rohres wird eine Formel aus Tabelle 8-4 im Anhang 8.6 für die Berechnung der Rohrreibungszahl herangezogen.

### 3.3 Grundlagen fluiddynamischer Simulationen

Die Strömungssimulationen werden mit dem Computerprogramm ANSYS® FLUENT® durchgeführt. In einem ersten Schritt wird die Geometrie eines Bauteils, durch welches das Fluid strömt, in einem Konstruktionsprogramm entworfen und aus dieser Geometrie der Fluidraum als Negativ des Bauteils erstellt. Zur orts aufgelösten Simulation der Strömung in ANSYS® FLUENT® wird eine Kontrollvolumentechnik angewandt. Dabei wird das gesamte Gebiet diskretisiert und damit in Zellen beziehungsweise Kontrollvolumina unterteilt. Die Diskretisierung des Strömungsgebiets – im Folgenden auch Vernetzung<sup>7</sup> genannt – mit ANSYS® ICEM CFD™ wird in Kapitel 3.3.1 vorgestellt. Für jedes Kontrollvolumen werden die Bilanzgleichungen für Masse, Impuls und Energie im Strömungslöser iterativ gelöst. Dazu werden die bilanziellen Gleichungen in jedem Kontrollvolumen integriert, um algebraische Gleichungen zu erhalten. Diese diskretisierten Gleichungen werden linearisiert und anschließend gelöst. Die Bilanzgleichungen werden in Kapitel 3.3.2 erläutert. Zusätzlich werden weitere physikalische Modelle angewandt, die in Kapitel 3.3.3 und 3.3.4 beschrieben werden. Vor Beginn des Iterationsprozesses können an besonderen Stellen wie beispielsweise bei Strömungseintritten benutzerdefinierte Profile vorgegeben werden. Über diese Profile werden Randbedingungen wie Geschwindigkeits- oder Temperaturprofile an bestimmten Geometrien festgelegt.

Wie in Kapitel 3.1 beschrieben, ist es das wesentliche Ziel der Strömungssimulationen in der vorliegenden Arbeit, die Strömungsverteilung im Membranmodul zu visualisieren und die Auswirkung dieser Strömungsverteilung auf die Abtrennperformance zu untersuchen. Dazu wird ein dreidimensionales Modell des Membranmoduls erstellt und simuliert. Obwohl das Bauteil geometrisch spiegelsymmetrisch ist, bedeutet dies aufgrund von Strömungsablösungen nicht, dass auch die Strömung spiegelsymmetrisch ist. Daher wird das volle Membranmodul mit den in Kapitel 3.3.1 vorgestellten Methoden abgebildet und berechnet. Um die Rechenzeit dennoch gering zu halten, wird das Werkzeug ANSYS® ICEM CFD zur räumlichen Diskretisierung angewandt, welches komplexe Geometrien in Hexaeder unterteilen kann, durch die weniger Zellen benötigt werden.

#### 3.3.1 Diskretisierung des Strömungsgebiets

In der vorliegenden Arbeit werden die Geometrien der Membranmodule in dem ANSYS® eigenen Geometriewerkzeug der ANSYS® Workbench™ erstellt. Dabei wird von dem realen Bauteil abstrahiert, ohne die wesentlichen Formen des Fluidraums zu verändern. Allerdings werden fertigungstechnische Komponenten wie Schweißnähte oder Verschraubungen nicht berücksichtigt. Die in Kapitel 2.4.1 beschriebene thermische Verschweißung der Membrantaschen wird mit einer vereinfachten Geometrie angenähert. Der Innenraum des Membranmoduls bildet den Fluidraum. In der vorliegenden Arbeit werden Interaktionen der Strömung mit den Festkörpern des Moduls vernachlässigt und nur der Fluidraum – also der Hohlraum des Bauteils – für die Strömungssimulationen verwendet. Dazu wird ein Negativ des Bauteils gebildet, indem der Hohlraum an den Ein- und Ausgängen des Bauteils virtuell durch eine Fläche abgegrenzt und gefüllt wird. Dieses Fluidvolumen bildet die Grundlage für die Vernetzung. Vor der Vernetzung ist es jedoch meist sinnvoll, einen Körper in mehrere Abschnitte zu unterteilen und damit mehrere Einzelkörper zu erhalten. Zum einen müssen Teilgebiete mit bestimmten Eigenschaften wie beispielsweise poröser Körper als ein separates Teilvolumen behandelt werden, da für dieses Teilvolumen besondere Gleichungen gelöst werden müssen. Zum anderen ist die Unterteilung für bestimmte Vernetzungsmethoden notwendig.

<sup>7</sup> Das Ergebnis der räumlichen Diskretisierung wird auch Rechengitter oder Rechennetz genannt, weshalb die Diskretisierung auch als Vernetzung bezeichnet wird.

Die Strömungssimulationen in ANSYS® FLUENT® werden mit der Finite-Volumen-Methode durchgeführt. Daher werden das gesamte Gebiet und damit jeder Einzelkörper in diskrete Volumina eingeteilt. Diese Volumina werden auch Zellen genannt. Da die Strömungsverteilung unsymmetrisch im Membranmodul erfolgt, werden ausschließlich dreidimensionale Modelle vernetzt. Für die Vernetzung bietet ANSYS® mehrere Programme an, von denen in der vorliegenden Arbeit ausschließlich ANSYS® Meshing™ und ANSYS® ICEM CFD™ angewandt und somit im Folgenden beschrieben werden.

Generell gibt es vier Grundformen von Volumenelementen, mit denen der Fluidraum in Zellen unterteilt werden kann. Dies sind die in Abbildung 3-3 abgebildeten Tetraeder, Pyramiden, Prismen und Hexaeder. Tetraeder bieten die Möglichkeit, einen hohen Automatisierungsgrad bei der Diskretisierung auszunutzen und komplexe Geometrien zu vernetzen. Bei einem konformen Netz liegen die Knotenpunkte benachbarter Zellen übereinander, sodass zwischen den Zellen nicht interpoliert werden muss. Damit ein konformes Netz erstellt wird, werden Pyramiden-Zellen bei dem Übergang zwischen Hexaeder zu Tetraeder-Zellen eingefügt. Bei der Vernetzung des Teilkörpers mit Tetraedern wird dabei ein Algorithmus angewandt, der diese Pyramiden-Zellen an dem Übergang generiert. Wird zuerst der Körper mit Tetraeder-Zellen vernetzt, ist eine anschließende Vernetzung eines Nachbarkörpers mit Hexaedern nicht möglich, da nachträglich keine Pyramiden-Zellen in den Teil mit Tetraedern eingefügt werden können. Daher ist die Reihenfolge bei der sequentiellen Vernetzung wichtig. Prismen können eingesetzt werden, wenn das Hauptvolumen mit Tetraedern vernetzt wird und die Grenzschicht am Rand des Fluidraums feiner aufgelöst werden soll. Eine Vernetzung mit Hexaedern bietet das Potential, die Anzahl der benötigten Elemente beziehungsweise Zellen zu reduzieren und damit die Rechenzeit zu verkürzen [82, S. 223]. Zudem reduziert das Hexaeder-dominante, strukturierte Netz den numerischen Fehler, da zwei Zellflächen orthogonal zur Strömungsrichtung angeordnet werden können und sich einfache Nachbarschaftsbeziehungen ergeben [83]. Daher ist eine Vernetzung mit einem möglichst hohen Anteil an Hexaeder-Zellen anzustreben.

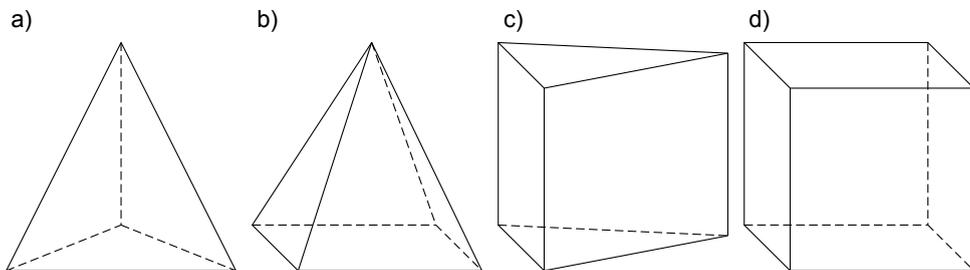


Abbildung 3-3: Grundformen von dreidimensionalen Zellen bei der Vernetzung des Strömungsgebietes: a) Tetraeder, b) Pyramide, c) Prisma, d) Hexaeder

In dem Werkzeug ANSYS® Meshing™ kann das Bauteil durch vier Methoden mit diesen Hexaeder-Zellen vernetzt werden. Die erste Methode ist die Sweep-Methode. Hierbei werden zwei topologisch gegenüberliegende Flächen eines Teilkörpers automatisch identifiziert beziehungsweise vom Benutzer gewählt. Auf der einen Fläche wird ein Oberflächengitter aus Dreiecken und Vierecken erzeugt und dieses Gitter wird durch den Teilkörper bis zur zweiten Fläche gezogen [82]. Somit wird ein Netz aus Hexaedern und Prismen generiert. Nicht jeder

Körper ist mit der Sweep-Methode vernetzbar. Wird der Körper zuvor in geeignete Teilkörper unterteilt, ist die Methode bei diesen Teilkörpern anwendbar. Bedingungen zur Anwendung dieser Methode werden in [82] erläutert. Die zweite Methode, ein Rechengitter mit nahezu ausschließlich Hexaeder-Zellen zu erstellen, ist die Assembly-Vernetzung mittels der CutCell-Methode. Bei ihr wird das gesamte Gebiet auf einmal vernetzt, sodass besondere Einstellungen für einzelne Teilkörper nicht berücksichtigt, sondern nur globale Einstellungen vorgenommen werden können. Um das Gebiet wird eine Box erstellt, welche unter Berücksichtigung von Randbedingungen bezüglich der maximalen und minimalen Zellgröße in kleinere Boxen unterteilt wird. Die dritte Methode ein Hexaeder-dominantes Netz zu generieren, ist die Hex Dominant-Methode. Auch hier wird der Körper hauptsächlich mit Hexaeder-Zellen aufgefüllt. Diese Technik lohnt sich vor allem, wenn große Volumina ausgefüllt werden müssen. Nachteilig ist, dass bei dünnen Körpern die Anzahl an Zellen im Gegensatz zu der Vernetzung mit Tetraedern ansteigen kann [82, S. 165]. Die vierte Methode – die Multizone-Methode – basiert auf einem Ansatz, bei dem wie in ANSYS® ICEM CFD™ Blöcke angelegt werden. Allerdings werden diese Blöcke automatisch erstellt. Die Kanten der Blöcke werden automatisch mit Linien des Teilkörpers und die Flächen der Blöcke automatisch mit Oberflächen des Teilkörpers assoziiert. Die Blöcke werden hauptsächlich mit Hexaeder-Zellen vernetzt und das Netz wird auf die Teilkörper übertragen.

Die vier genannten Methoden haben entweder einen begrenzten Einsatzbereich oder sind nicht ausreichend kontrollierbar bei inhomogenen Geometrien. Dagegen bietet das Werkzeug ANSYS® ICEM CFD™ die Möglichkeit, ein vollständig strukturiertes Netz – das heißt mit Hexaedern vernetztes Netz – auch bei mäßig komplexen Geometrien zu erstellen und dabei die Vernetzung manuell steuern zu können. Bei komplexen Geometrien ist jedoch auch bei diesem Werkzeug eine Vernetzung eines Teilgebiets mit Tetraedern unumgänglich. Die Vernetzung mit ANSYS® ICEM CFD™ basiert auf der Blocking-Methode, wobei die Blöcke vom Benutzer manuell definiert und auf die Geometrie assoziiert werden. Bei der Blockerstellung kann entweder das Top-Down- oder das Bottom-Up-Prinzip verwendet werden. Das Top-Down-Prinzip startet mit einem großen Block, der das gesamte Gebiet umfasst. Dieser wird in mehrere kleine Blöcke geschnitten, um so die Geometrie des Gebietes abzubilden. Beim Bottom-Up-Prinzip werden ausgehend von der Oberfläche des Gebietes direkt kleine Blöcke extrudiert. In der vorliegenden Arbeit wird ausschließlich das Top-Down-Prinzip angewandt, dessen Methodik in Abbildung 3-4 dargestellt ist.

Zunächst wird wie erwähnt ein großer Block erstellt, welcher den gesamten Körper umfasst. Dieser wird in mehrere Einzelblöcke geschnitten, die der Geometrie des Körpers angepasst sind. Überflüssige Blöcke, die außerhalb des zu simulierenden Gebiets liegen, werden gelöscht. Daraufhin wird den geometrischen Elementen des Körpers das Element der entsprechenden Dimension des den Teilkörper umfassenden Blocks zugewiesen. Beispielsweise wird der Kante des Teilkörpers die Kante des zugehörigen Blocks zugewiesen. Danach werden die Kanten manuell eingeteilt, sodass die Auflösung jedes Teilkörpers in allen drei Dimensionen vom Benutzer festgelegt werden kann. Bereiche im Strömungsgebiet, die im Fokus der Untersuchung liegen, können geometrisch höher aufgelöst werden, indem die Einteilung der Kanten inhomogen erfolgt. Sind alle Kanten aufgeteilt, wird ein Pre-Mesh generiert, welches das Rechengitter visualisiert und berechnet. Für das berechnete Pre-Mesh kann die Netzqualität geprüft werden. Ist sie ungenügend, werden ein oder mehrere Schritte der Vernetzung wiederholt. Im Falle einer guten Netzqualität wird das Netz exportiert, damit es in FLUENT® eingelesen werden kann. Bei leichten Änderungen in der Geometrie kann die Einteilung in die Blöcke übernommen und somit schnell ein neues Netz generiert werden.

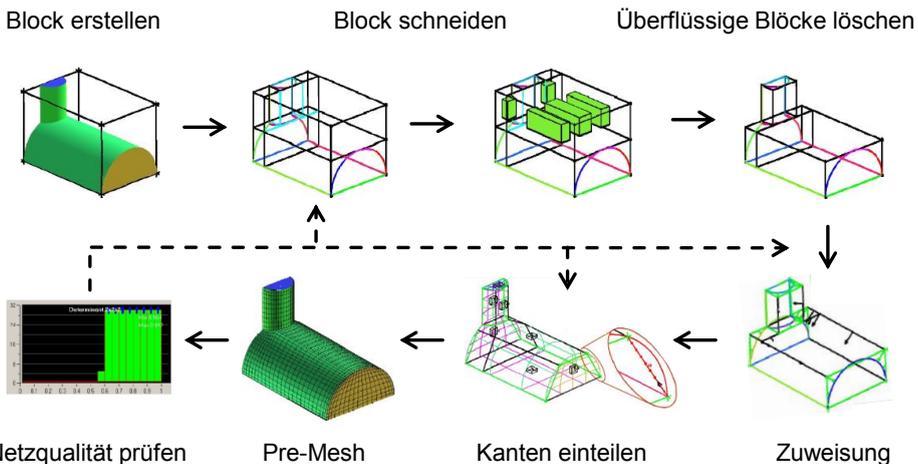


Abbildung 3-4: Vernetzungsmethodik in ANSYS® ICEM CFD™ nach dem Top-Down-Prinzip in Anlehnung an [84; 85]

Das wichtigste Kriterium für die Bewertung der Netzqualität ist die Verformtheit– auch Skewness genannt – des Netzes beziehungsweise einzelner Zellen. Die Skewness wird für ANSYS® Meshing™ über Gl. 3-34 bestimmt [82, S. 134]. In ANSYS® ICEM CFD™ wird dagegen die Equiangle Skewness als Bewertungsgröße verwendet, die sich durch Subtraktion der Skewness von dem Wert eins ergibt [86, S. 426].

$$Skewness = \max \left[ \frac{\Theta_{max} - \Theta_e}{180 - \Theta_e}, \frac{\Theta_e - \Theta_{min}}{\Theta_e} \right] \quad \text{Gl. 3-34}$$

In Gl. 3-34 stehen  $\Theta_{max}$  und  $\Theta_{min}$  für den maximalen beziehungsweise minimalen Winkel zwischen zwei Kanten einer Zelle.  $\Theta_e$  gibt den optimalen Winkel einer Zelle an. Dieser Winkel ist der Winkel eines gleichseitigen Grundkörpers und liegt für Tetraeder bei  $\Theta_e = 60^\circ$  und für Hexaeder bei  $\Theta_e = 90^\circ$ . Die Skewness kann Werte zwischen null und eins annehmen. Für die Skewness einer Zelle sind Werte oberhalb von 0,95 zu vermeiden [83]. Zellen mit der gleichen Skewness beziehungsweise Equiangle Skewness können im abgebildeten Netz visualisiert beziehungsweise hervorgehoben werden. Damit ist es möglich, Zellen mit schlechter Qualität zu lokalisieren, um Maßnahmen zur Verbesserung der Netzqualität zielgerichtet durchführen zu können.

Bei dem Übergang von einem großen Volumen zu mehreren kleinen Volumina muss gewährleistet sein, dass alle Teilvolumina ausreichend genau aufgelöst sind. Dabei müssen auch in den kleinen Volumina – wie beispielsweise in schlanken Kanälen – mehr als zwei Zellen übereinander orthogonal zur Hauptströmungsrichtung dieses Strömungsgebiet abbilden. Ansonsten würde aufgrund der Bedingung, dass an der Wand die Geschwindigkeit gleich null wird, der gesamte Bereich die Geschwindigkeit null haben. Würde das große Volumen mit dieser feinen Auflösung ausgefüllt, wäre die Anzahl an Zellen in diesem Bereich zu groß. In der vorliegenden Arbeit wird die so genannte Refinement-Funktion genutzt, um einen Übergang zwischen dem groben und feinen Netz zu generieren. Hierbei wird die Anzahl an Zellen in einer Raumrichtung sprunghaft um einen Skalierungsfaktor geändert. Dabei entsteht ein nicht-konformes Netz, sodass zwischen den Zellen interpoliert wird [87].

### 3.3.2 Bilanzgleichungen der Fluidynamik

Im folgenden Kapitel werden zunächst die Bilanzgleichungen für die Masse, den Impuls und die Energie dargestellt, die die Grundlage der Berechnung des Strömungsfeldes bilden. Die Lösung dieser nicht-linearen, partiellen Differentialgleichungen erfolgt in einem Prozess, der nachfolgend beschrieben wird. Anschließend werden zwei Programmelemente vorgestellt, die diesen Lösungsprozess beschleunigen. Zum einen können geeignete Startlösungen vor der ersten Iteration mit der Initialisierung und mit benutzerdefinierten Profilen vorgegeben werden. Zum anderen kann der Lösungsprozess mittels Parallelisierung auf mehrere Prozessoren aufgeteilt werden.

Eine skalare Größe  $\phi$  ändert sich innerhalb eines infinitesimalen Volumenelements  $\partial V$  zeitlich nur durch Konvektion und verallgemeinerte Leitung über die Oberfläche des Volumens sowie durch Quellen innerhalb dieses Volumens. Daher gilt für jeden Punkt innerhalb dieses Volumenelements die allgemeine differenzielle Bilanzgleichung gemäß Gl. 3-35 in Anlehnung an [88, S. 25]. Die Volumenelemente in den Strömungssimulationen sind die durch die in Kapitel 3.3.1 beschriebene Unterteilung des Gebiets erhaltenen Zellen.

$$\underbrace{\frac{\partial \rho \cdot \phi}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} = - \left( \underbrace{\nabla \rho \cdot \phi \cdot \vec{v}}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\nabla \Gamma_{\phi}}_{\text{allg. Leitung}} \right) + \underbrace{S_{\phi}}_{\text{Quelle}} \quad \text{Gl. 3-35}$$

Aus dieser allgemeinen Bilanzgleichung ergeben sich in Anlehnung an [89, S. 2f, S. 124 und S. 177] die Massenbilanz gemäß Gl. 3-36, die Massenbilanz der Komponente  $i$ , Gl. 3-37, die Impulsgleichung für alle drei Raumrichtungen, Gl. 3-38 und die Energiegleichung, Gl. 3-39.

$$\underbrace{\frac{\partial \rho}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} = - \left( \underbrace{\nabla \rho \cdot \vec{v}}_{\text{Konvektion}} \right) + \underbrace{S_m}_{\text{Quelle}} \quad \text{Gl. 3-36}$$

$$\underbrace{\frac{\partial \rho_i}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} = - \left( \underbrace{\nabla \rho_i \cdot \vec{v}}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\nabla j_i}_{\text{Diffusion}} \right) + \underbrace{S_i}_{\text{Quelle/Reaktion}} \quad \forall i \in \{\text{CO}_2, \text{N}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{O}_2, \text{Ar}\} \quad \text{Gl. 3-37}$$

$$\underbrace{\frac{\partial \rho \cdot \vec{v}}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} = - \left( \underbrace{\nabla \rho \cdot \vec{v} \cdot \vec{v}}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\nabla p}_{\text{Druckänderung}} \right) + \underbrace{\nabla(\bar{T})}_{\text{Reibung}} + \underbrace{\rho \cdot \vec{g}}_{\text{Gravitation}} + \underbrace{S_x}_{\text{Quelle/Kräfte}} \quad \text{Gl. 3-38}$$

$$\underbrace{\frac{\partial \rho \cdot E}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} = \nabla \left( \underbrace{-(\rho \cdot E + p) \cdot \vec{v}}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\lambda_{\text{eff}} \cdot \nabla T}_{\text{Wärmeleitung}} + \underbrace{(\bar{r}_{\text{eff}} \cdot \vec{v})}_{\text{Dissipation}} - \underbrace{\sum_j h_j \cdot \vec{J}_j}_{\text{Diffusion}} \right) + \underbrace{S_h}_{\text{Reaktion}} \quad \text{Gl. 3-39}$$

Da in der allgemeinen Bilanz schon die Massendichte in dem Akkumulations- und dem Konvektionsterm enthalten ist, ergibt sich die Massenbilanz, indem die skalare Größe gleich eins gesetzt wird. Der Quellterm  $S_m$  ist für gewöhnlich gleich null, da die Masse eine Erhaltungsgröße ist. In ANSYS® FLUENT® können in Teilgebieten des simulierten Volumens jedoch Massenquellen modelliert werden, wenn zum Beispiel der eigentliche Zulaufkanal zu klein ist und nicht mitmodelliert werden soll. In der vorliegenden Arbeit dient diese Massenquelle dazu, den Stofftransport durch eine dichte Wand – die Membran – zu modellieren. Auch ein Massenübergang aus der dispersen Phase in die kontinuierliche Phase zum Beispiel durch Verdampfung kann mit diesem Quellterm erfasst werden [89, S. 2].

Für die Massenbilanz der Komponente  $i$  wird als skalare Größe der Massenanteil dieser Komponente verwendet. Der Quellterm  $S_i$  in dieser Gl. 3-37 beschreibt neben den für die Gesamtmasse genannten Quellen auch die Änderung der Masse der Komponente  $i$  durch chemische Reaktionen. Der verallgemeinerte Leitungsterm entspricht hier der Diffusion einer Komponente in einem Mehrkomponentengemisch, die bereits in Kapitel 3.2.2 für die Konzentrationsgrenzschicht beschrieben ist.

Die Impulsgleichung gemäß Gl. 3-38 lässt sich auch aus dem Kräftegleichgewicht des zweiten Newtonschen Gesetzes herleiten, in dem die Summe der Volumen- und Oberflächenkräfte der zeitlichen Impulsänderung gleichgestellt wird. Aus der zeitlichen Änderung des Impulses resultieren der Akkumulations- und Konvektionsterm der Gl. 3-38. Als Volumenkraft wird hier ausschließlich die Gravitationskraft als Produkt aus Dichte  $\rho$  und Gravitationskonstante  $\bar{g}$  berücksichtigt. Zu den Oberflächenkräften zählen der Druck und die Reibungskräfte. Weitere Kräfte sowie benutzerdefinierte Impulsquellen können durch den Term  $S_x$  implementiert werden.

In Gl. 3-39 steht  $E$  für die Gesamtenergie, die sich gemäß Gl. 3-40 aus der inneren Energie  $u$  und der kinetischen Energie zusammensetzt. Die innere Energie wiederum ergibt sich aus der Enthalpie  $h$  vermindert um die Volumenarbeit.

$$E = \underbrace{u}_{\text{innere Energie}} + \underbrace{\frac{v^2}{2}}_{\text{kinetische Energie}} = \underbrace{h}_{\text{Enthalpie}} - \underbrace{\frac{p}{\rho}}_{\text{Volumenarbeit}} + \frac{v^2}{2} \quad \text{Gl. 3-40}$$

Die Akkumulations- und Konvektionsterme resultieren aus der zeitlichen Änderung der Gesamtenergie. Ein Enthalpiestrom ergibt sich aufgrund des Diffusionsstroms der Komponente  $i$ . Zusätzlich repräsentieren der zweite und dritte Term der rechten Seite von Gl. 3-39 die Wärmeleitung innerhalb der Fluidphase mit  $\lambda_{\text{eff}}$  als effektiver Wärmeleitfähigkeit beziehungsweise die Wärmeentwicklung aufgrund von Dissipation. Der Produktionsterm  $S_h$  beinhaltet die Reaktionsenthalpie, falls chemische Reaktionen stattfinden, und einen benutzerdefinierten Quellterm. In der vorliegenden Arbeit wird dieser Quellterm genutzt, um die Enthalpie des durch die Membran permeierenden Stoffstroms von der Feed- auf die Permeatseite zu transportieren.

Der Lösungsprozess dieser Bilanzgleichungen wird im Anhang 8.7 beschrieben.

#### 3.3.3 Turbulenzmodellierung

Im Gegensatz zu laminaren Strömungen sind turbulente Strömungen durch eine statistische Schwankung der Geschwindigkeit in allen drei Dimensionen gekennzeichnet, bei der chaotische Verwirbelungen entstehen. Die Entstehung dieser Unregelmäßigkeiten in der Strömung hängt von der Geschwindigkeit, der Dichte und dynamischen Viskosität des Fluids und der charakteristischen Länge des durch- beziehungsweise angeströmten, festen Körpers ab. Aus diesen Größen wird die dimensionslose Reynoldszahl gemäß Gl. 3-25 gebildet. Die kritische Reynoldszahl für Rohrströmungen liegt abhängig von der Rauigkeit der Rohrwand und weiteren exogenen Strömungsstörungen bei 2000 bis 4000. In diesem Bereich der Reynoldszahl findet ein Übergang zwischen laminarer und turbulenter Strömung statt. Häufig wird als fester Grenzwert eine Reynoldszahl von 2300 angegeben [90, S. 145]. Technische Gasströmungen in Rohren sind in der Regel turbulent, da sie aufgrund der Rohrdurchmesser und Strömungsgeschwindigkeiten eine Reynoldszahl  $> 2300$  aufweisen.

Große Wirbel zerfallen dabei als Folge von Instabilitäten in kleine Wirbel bis die kleinsten Wirbel durch innere Reibung zu Wärme dissipieren [91]. Die aufgelöste Darstellung dieser sogenannten Energiekaskade der Turbulenz in CFD-Simulationen ist nur mittels direkter numerischer Simulation möglich. Hierfür muss das Strömungsgebiet räumlich so stark aufgelöst werden, dass die kleinsten Wirbel dargestellt werden können. Diese Auflösung der kleinsten Wirbel bedeutet sehr hohe Rechenzeiten und ist für die Simulationen der vorliegenden Arbeit nicht notwendig.

Daher wird der Ansatz der Reynoldsmittelung zur Modellierung der Turbulenz verwendet. Hierbei wird angenommen, dass sich jede Größe  $\phi$  gemäß Gl. 3-41 in einen gemittelten und einen zeitlich fluktuierenden Anteil aufspaltet.

$$\phi = \underbrace{\bar{\phi}}_{\text{gemittelter Wert}} + \underbrace{\phi'}_{\text{Fluktuation}} \quad \text{Gl. 3-41}$$

Dieser Ausdruck wird in die in Kapitel 3.3.2 vorgestellten Erhaltungsgleichungen eingesetzt und die Erhaltungsgleichungen werden über ein Zeitintervall  $T$  zeitlich gemittelt. Dieses Zeitintervall ist größer als die Schwankungsdauer und geringer als jede Instationarität einer Größe [92]. Diese Mittelung – auch Reynoldsmittelung genannt – ergibt die Reynolds-gemittelten Navier-Stokes Gleichungen gemäß Gl. 3-42 und Gl. 3-43. Bei der Mittelung ist zu beachten, dass die Mittelung eines gemittelten Wertes wieder den Mittelwert ergibt und die Mittelung der Fluktuationsgröße per Definition null ist. Die Mittelung des Produktes zweier Fluktuationsgrößen ist jedoch nicht null, sodass in Gl. 3-43 ein Term übrig bleibt, der von Fluktuationsgrößen abhängig ist. Er wird Reynoldscher Spannungstensor genannt. Zur einfacheren Darstellung wird die Mittelung nur bei dem Reynoldschen Spannungstensor durch einen Querbalken gekennzeichnet.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \cdot v_i)}{\partial x_i} = 0 \quad \text{Gl. 3-42}$$

$$\frac{\partial(\rho \cdot v_i)}{\partial t} + \sum_j \frac{\partial(\rho \cdot v_i \cdot v_j)}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \sum_j \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \eta \cdot \left( \frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \cdot \delta_{ij} \cdot \sum_l \frac{\partial v_l}{\partial x_l} \right) \right] + \sum_j \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \overline{-\rho v_i' v_j'} \right) \quad \text{Gl. 3-43}$$

Reynoldscher  
Spannungstensor

Der Reynoldsche Spannungstensor wird über Turbulenzmodelle bestimmt, damit die Impulsgleichung Gl. 3-43 gelöst werden kann. Bindeglied zwischen Impulsgleichung und Turbulenzmodell ist die Theorie von Boussinesq. In ihr ist der Reynoldsche Spannungstensor über die turbulente Viskosität  $\eta_t$ , die eine Hilfsgröße und keine physikalische Größe darstellt, mit den mittleren Geschwindigkeitsgradienten gemäß Gl. 3-44 zu verknüpfen [89, S. 42].

$$\tau_t = \overline{-\rho v_i' v_j'} = \eta_t \left( \frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \cdot \delta_{ij} \cdot \sum_l \frac{\partial v_l}{\partial x_l} \right) - \frac{2}{3} \cdot \rho \cdot k \cdot \delta_{ij} \quad \text{Gl. 3-44}$$

In Gl. 3-44 steht  $k$  für die turbulente kinetische Energie und das  $\delta_{ij}$  für das Kronecker-Delta. Es gibt verschiedene Turbulenzmodelle, die sich jeweils für bestimmte Strömungen eignen und zur Bestimmung der turbulenten Viskosität genutzt werden. Das geläufigste Modell ist das  $k$ - $\epsilon$ -Modell. Es ist relativ einfach zu implementieren, liefert für die meisten Strömungen – vor allem für Strömungen im wandfernen Bereich – ausreichend genaue Ergebnisse und

konvergiert stabil [93]. Es hat jedoch Schwächen bei der Abbildung von druckinduzierten Strömungsablösungen und für die Strömung im wandnahen Bereich muss eine Wandfunktion eingesetzt werden [93]. Das  $k$ - $\omega$ -Modell liefert auch für die Strömung in Wandnähe ohne Wandfunktion gute Ergebnisse und kann auch Strömungsablösungen adäquat wiedergeben. Das Scherspannungstransport  $k$ - $\omega$ -Modell (SST  $k$ - $\omega$ -Modell) vereint die Vorteile des  $k$ - $\varepsilon$ -Modells in der Hauptströmung und des  $k$ - $\omega$ -Modells in Wandnähe und bei Strömungsablösungen. Es besteht aus dem  $k$ - $\omega$ -Modell und einem modifizierten  $k$ - $\varepsilon$ -Modell, die durch eine Mischungsfunktion miteinander gekoppelt sind. Diese Mischungsfunktion ist derart gestaltet, dass in Wandnähe das  $k$ - $\omega$ -Modell und in der Hauptströmung das modifizierte  $k$ - $\varepsilon$ -Modell aktiviert wird [89, S. 62]. Um den gesamten Fluidraum adäquat mit turbulenter Strömung abbilden zu können, wird das SST  $k$ - $\omega$ -Modell in der vorliegenden Arbeit angewandt. Die Transportgleichungen dieses Modells für die turbulente kinetische Energie  $k$  und die spezifische Dissipationsrate  $\omega$  sind in Gl. 3-45 und Gl. 3-46 gegeben.

$$\frac{\partial(\rho \cdot k)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \cdot k \cdot v_j)}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \Gamma_k \cdot \frac{\partial k}{\partial x_j} \right) + \tilde{G}_k - Y_k + S_k \quad \text{Gl. 3-45}$$

$$\frac{\partial(\rho \cdot \omega)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \cdot \omega \cdot v_j)}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \Gamma_\omega \cdot \frac{\partial \omega}{\partial x_j} \right) + G_\omega - Y_\omega + D_\omega + S_\omega \quad \text{Gl. 3-46}$$

Während  $\tilde{G}_k$  und  $G_\omega$  Terme zur Erzeugung für die turbulente kinetische Energie und die spezifische Dissipationsrate durch gemittelte Geschwindigkeitsgradienten repräsentieren, sind  $S_k$  und  $S_\omega$  benutzerdefinierte Quellterme dieser Größen.  $\Gamma_k$  und  $\Gamma_\omega$  stehen für das effektive Diffusionsvermögen von  $k$  und  $\omega$  und  $Y_k$  und  $Y_\omega$  geben die Dissipation von  $k$  und  $\omega$  aufgrund der Turbulenz an. Schließlich ergibt sich durch Vereinigung des  $k$ - $\varepsilon$ -Modells mit dem  $k$ - $\omega$ -Modell ein weiterer Term  $D_\omega$  in der Transportgleichung der spezifischen Dissipationsrate, der für die Cross-Diffusion steht. In dem Scherspannungstransport  $k$ - $\omega$ -Modell wird die turbulente Viskosität über Gl. 3-47 bestimmt [89, S. 63].

$$\eta_t = \frac{\rho \cdot k}{\omega} \cdot \frac{1}{\max \left[ \frac{1}{\alpha^*}, \frac{S \cdot F_2}{\alpha_1 \cdot \omega} \right]} \quad \text{Gl. 3-47}$$

In Gl. 3-47 steht  $\alpha^*$  für eine Korrektur zur Dämpfung der turbulenten Viskosität bei niedrigen turbulenten Reynoldszahlen,  $S$  gibt die Dehnungsgeschwindigkeit an,  $F_2$  ist eine Funktion zur Mischung der beiden Turbulenzmodelle und  $\alpha_1=0,31$  ist eine Konstante. Die Bestimmungsgleichungen und sämtliche Konstanten der genannten Terme sind in [89, S. 39ff] dargestellt.

### 3.3.4 Poröse Körper als Ersatzmodell für Spacer-gefüllte Kanäle

Zwischen den Maßen des Spacers und des gesamten Membranmoduls liegen ungefähr drei Größenordnungen. Während der Durchmesser der Spacerfilamente im Millimeterbereich liegt, liegen die Geometriegrößen des Moduls im Meterbereich. Um die Feinstruktur der Spacer in ANSYS® FLUENT® geometrisch abzubilden, müssen bei der Diskretisierung des Fluidraums – also des Negativs der Spacer – kleine Zellen mit einer Größe im Mikrometerbereich eingesetzt werden. Bei der Vernetzung des freien Volumens eines Feedkanals mit einer beispielhaften Größe von 1 mm x 600 mm x 1000 mm und der Annahme eines durchschnittlichen Zellvolumens<sup>8</sup> von ca.  $5 \cdot 10^{-4} \text{ mm}^3$  würden ungefähr eine Milliarde Zellen für eine adäquate Auflösung des Fluidraums benötigt. Um mehrere Kanäle zu vernetzen, ergibt sich eine

<sup>8</sup> Dies entspricht einer angenommenen Kantenlänge der Zelle von 80  $\mu\text{m}$ .

entsprechend höhere Gesamtanzahl an Zellen. Daher wird sich in der Literatur darauf beschränkt, räumliche Periodizität zur 3D-Modellierung von Strömungen durch Spacer anzunehmen und nur eine sich geometrisch wiederholende Einheitszelle zu simulieren [47].

Um CFD-Simulationen des gesamten Membranmoduls inklusive der kompletten Spacer-gefüllten Kanäle durchführen zu können, wird daher ein Ersatzmodell verwendet, welches auch in [69] vorgestellt wird. Bei diesem wird die Spacer-Geometrie in ANSYS® FLUENT® nicht abgebildet, sondern es wird ein Kanal bestehend aus einem porösen Körper modelliert. Die Diskretisierung des als poröser Körper abgebildeten Strömungskanals unterscheidet sich nicht von der Diskretisierung eines leeren Strömungskanals. Die Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers wird – wie in Kapitel 4.1.2 beschrieben – aus der Druckverlustcharakteristik des eingesetzten Spacers ermittelt. Für die Modellierung poröser Körper werden in ANSYS® FLUENT® zusätzliche Modellierungsgleichungen aktiviert, die den porösen Charakter des Fluidraums wiedergeben. Insbesondere fügt ANSYS® FLUENT® für Gebiete mit porösen Körpern jeweils einen Quellterm in der x-, y- und z-Impulsgleichung gemäß Gl. 3-48 hinzu, der den Druckverlust des porösen Bauteils durch Wechselwirkung zwischen Fluid- und Feststoffphase quantifiziert [94, S. 219]. Der erste Term des Quellterms gibt die viskosen Verluste wieder. Wird nur dieser Term berücksichtigt ergibt sich eine lineare Abhängigkeit des Druckverlustes von der Leerkanalgeschwindigkeit und der Viskosität  $\eta$ . Diese Gesetzmäßigkeit ist auch als Darcy-Gesetz bekannt. Die Leerkanalgeschwindigkeit ergibt sich aus der physikalischen Geschwindigkeit  $v$  und der Porosität  $\varepsilon$ , welche für Spacer über Gl. 2-9 oder Gl. 2-10 bestimmt wird. Der zweite Term beschreibt eine quadratische Abhängigkeit des Druckverlustes von der Leerkanalgeschwindigkeit und erweitert den Quellterm für höhere Geschwindigkeiten beziehungsweise größere Reynoldszahlen um Trägheitsverluste [94, S. 220]. Dieser Term ist auch als Forchheimer-Term bekannt.

$$S_i = \frac{\Delta p}{\Delta x_i} = - \left( \sum_{j=1}^3 \frac{\eta}{K_{ij}} \cdot \varepsilon \cdot v_j + \sum_{j=1}^3 C_{ij} \cdot \frac{\rho}{2} \cdot \varepsilon^2 \cdot |v| \cdot v_j \right) \quad \forall i \in \{x, y, z\} \quad \text{Gl. 3-48}$$

Die Einträge der Matrizen  $[K]$  und  $[C]$  sind nur auf den Diagonaleinträgen ungleich null. Die Diagonaleinträge  $K_{ij}$  geben die Permeabilitäten des Feststoffs in alle drei Raumrichtungen wieder. Die Trägheitsverluste werden über die Matrixeinträge  $C_{ij}$  mit dem dynamischen Druck verbunden. Unter der Annahme eines homogenen, porösen Materials vereinfacht sich der Quellterm zu Gl. 3-49. Die Spacer sind in zwei Raumrichtungen als homogen zu betrachten. Senkrecht zu den Hauptausbreitungsrichtungen der Spacerschicht ist die Permeabilität  $K_{ij}$  größer als in die anderen beiden Raumrichtungen. Damit sind auch die Verlustterme in dieser Richtung kleiner. Da die Ausbreitung des Spacers in diese Raumrichtung jedoch nur so groß ist wie die Kanalhöhe – also ein paar Millimeter – hat die vereinfachende Annahme eines isotropen, porösen Körpers keine großen Auswirkungen auf die Modellierung. Zudem ist die Permeabilität in diese Raumrichtung nicht experimentell bestimmt worden, sodass sie der Permeabilität in die anderen beiden Raumrichtungen gleichgesetzt wird.

$$S_i = \frac{\Delta p}{\Delta x_i} = - \left( \frac{\eta}{K} \cdot \varepsilon \cdot v_i + C_2 \cdot \frac{\rho}{2} \cdot \varepsilon^2 \cdot |v| \cdot v_i \right) \quad \forall i \in \{x, y, z\} \quad \text{Gl. 3-49}$$

Der übrige Teil der Bilanzgleichungen wird lediglich um die Porosität erweitert, um dem Umstand einer erhöhten physikalischen Strömungsgeschwindigkeit Rechnung zu tragen. Zusätzlich wird in der Energiegleichung gemäß Gl. 3-39 die effektive Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{\text{eff}}$  aus den Wärmeleitfähigkeiten der Fluid- und Feststoffphase gewichtet mit dem Volumenanteil

jeder Phase bestimmt. Das Membranmodul befindet sich im thermischen Gleichgewicht und Temperaturänderungen aufgrund isenthalper Entspannung sind vernachlässigbar gering [15]. Dies bedeutet, dass die Festkörperphase im porösen Körper die gleiche Temperatur wie die Fluidphase besitzt und sich diese Temperatur mit der Zeit nicht ändert.

### 3.4 Auslegung von Querschnittserweiterungen

Querschnittserweiterungen finden häufig in Bauteilen statt, die über eine Rohrleitung mit anderen Bauteilen verbunden sind. Weiterhin werden sie als Übergangs- sowie Enddiffusoren im durchströmten Kanal eingesetzt. Diese Diffusoren werden so ausgelegt, dass definierte Geschwindigkeits- und Druckänderungen bewirkt werden. Dabei ist das Ziel der Auslegung meist eine möglichst hohe Druckrückgewinnung, indem der dynamische Druck des schnellen Fluids in statischen Druck mit möglichst geringen Druckverlusten umgewandelt wird.

Erweitert sich der Querschnitt eines durchströmten Körpers, ändern sich unter der Annahme eines inkompressiblen Mediums auch immer die Geschwindigkeit und der Druck des durchströmenden Fluids. Dies geht mit komplexen Veränderungen der Strömung einher, wobei der Strömungszustand von der Geometrie abhängig ist. Auch das Gegenstrommodul ist an die Rohrleitung mit einer Querschnittserweiterung angeschlossen, sodass komplexe Strömungszustände auftreten. Die Querschnittserweiterung findet im Membranmodul von einem kreisförmigen auf einen eckigen Querschnitt statt. Stromabwärts tritt das Gasgemisch in den Membranstapel ein, sodass der Strömungszustand in der Querschnittserweiterung die Strömungsverteilung im Membranstapel beeinflusst. Eine möglichst homogene Verteilung garantiert, dass jede Membrantasche mit dem gleichen Volumenstrom gespeist wird und somit eine homogene Abtrennung in allen Kanälen stattfinden kann. Ansonsten kann es in einigen Feedkanälen schneller als in anderen zu einer  $\text{CO}_2$ -Abreicherung kommen. Dies verschlechtert das Abtrennergebnis, falls in einzelnen Kanälen die  $\text{CO}_2$ -Permeation vor dem Kanalende aufhört. Im Folgenden werden die von der Geometrie abhängigen Strömungszustände in divergenten Kanälen erläutert, die den Strömungszuständen in Diffusoren entsprechen. Weiterhin werden Einflussmöglichkeiten auf die Strömungsführung dargestellt, welche das Strömungsphänomen Strömungsablösung verhindern sollen, damit eine homogene Anströmung des Membranstapels erzielt werden kann.

#### Strömungszustände in Querschnittserweiterungen

Die Geometrie einer Querschnittserweiterung ist in Abbildung 3-5 beispielhaft für kreisförmige Querschnitte dargestellt. Der durchströmte Querschnitt steigt von  $A_1$  auf  $A_2$  an. Abhängig von der Länge der Querschnittserweiterung  $l$  und dem Verhältnis der Start- und Endquerschnitte ergibt sich der Öffnungswinkel  $\varphi$ .

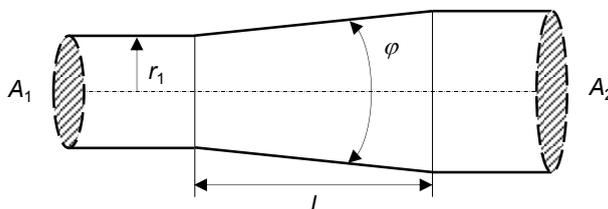


Abbildung 3-5: Geometrie einer Querschnittserweiterung

In einer Querschnittserweiterung von  $A_1$  zu  $A_2$ , in der sich keine Masse ansammelt, verringert sich nach der in Gl. 3-50 beschriebenen Kontinuitätsgleichung bei konstanter Dichte  $\rho$  die Strömungsgeschwindigkeit von  $v_1$  zu  $v_2$ . Entlang einer Stromlinie gilt zusätzlich unter Annahme einer reibungsfreien, inkompressiblen Strömung die Bernoulli-Gleichung gemäß Gl. 3-51, sodass unter Vernachlässigung von Höhenunterschieden  $z_1=z_2$  eine geringere Geschwindigkeit  $v_2 < v_1$  einen höheren statischen Druck  $p_2 > p_1$  bedeutet.

$$\rho_1 \cdot v_1 \cdot A_1 = \rho_2 \cdot v_2 \cdot A_2 \xrightarrow{\rho_1 = \rho_2 = \rho} v_1 \cdot A_1 = v_2 \cdot A_2 \quad \text{Gl. 3-50}$$

$$p_1 + \frac{\rho}{2} \cdot v_1^2 + \rho \cdot g \cdot z_1 = p_2 + \frac{\rho}{2} \cdot v_2^2 + \rho \cdot g \cdot z_2 \quad \text{Gl. 3-51}$$

Bei unstetigen Querschnittserweiterungen oder solchen mit stark steigendem Querschnittsverhältnis und scharfen Kanten kann es zu geometrieinduzierten Strömungsablösungen kommen. Diese Strömungsablösung tritt auf, wenn die wandnahen Stromlinien nicht mehr der Wand folgen können [95, S. 1]. Am Wiederanlegepunkt tritt die Stromlinie, die gerade das Ablösegebiet von der Hauptströmung trennt, wieder auf die Wand und wird zur Wandstromlinie. Dieses Phänomen tritt häufig in Diffusoren auf, bei denen stromabwärts des Bereiches der Querschnittserweiterung eine ungehinderte Strömung vorliegt. Dabei werden je nach Öffnungswinkel vier verschiedene Strömungszustände ausgebildet, die in Abbildung 3-6 dargestellt sind.

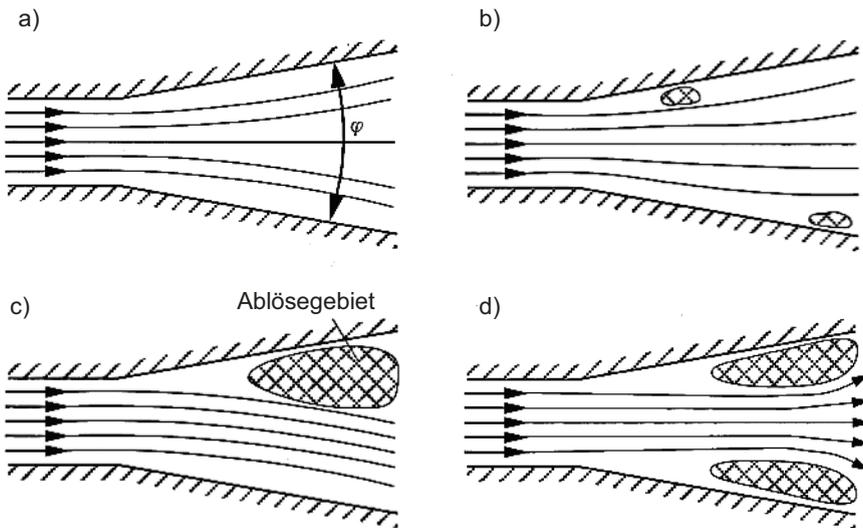


Abbildung 3-6: Strömungszustände in Diffusoren in Anlehnung an [96]: a) anliegende, stationäre Strömung; b) instationäre Strömung mit örtlich und zeitlich veränderlicher Ablösung; c) voll ausgebildetes Ablösegebiet mit Hauptströmung an einer Wand; d) Freistrahlsströmung mit beidseitigem Ablösegebiet

Bei kleinen Öffnungswinkeln  $\varphi$  liegt die Strömung auch nach der Kante wieder an der Wand an. Es bildet sich kein nennenswertes Ablösegebiet aus. Dieser Strömungszustand ist in Abbildung 3-6 a) wiedergegeben. Wird der Öffnungswinkel größer, kann es zu ersten, instationär auftretenden Ablösungen kommen. Diese müssen nicht unbedingt direkt hinter der

scharfen Kante auftreten, wie in Abbildung 3-6 b) angedeutet. Hier sind druckinduzierte Ablösungen aufgrund positiver Druckgradienten möglich. Bei noch größeren Öffnungswinkeln ergibt sich ein stationäres Ablösegebiet an einer Wand, während die Strömung – wie in Abbildung 3-6 c) gezeigt – an der anderen Wand weiter anliegt. Schließlich bildet sich eine Freistrahlsströmung gemäß Abbildung 3-6 d) aus, bei der die Strömung an beiden Seiten direkt an der scharfen Kante ablöst. Durch die konische Diffusorform der Querschnittserweiterung im Membranmodul stellen sich diese Strömungszustände auch im Zulaufbereich des Membranmoduls ein, wie in Kapitel 4.2.1 dargestellt.

Die Übergänge zwischen den Strömungszuständen sind nicht nur vom Öffnungswinkel, sondern auch vom Verhältnis zwischen Länge der Querschnittserweiterung und Radius des kleineren Querschnitts abhängig. In Abbildung 3-7 sind diese Abhängigkeiten für ebene Diffusoren mit geraden Wänden dargestellt. Der Übergang zwischen stationärer, anliegender Strömung und instationärer Strömung mit Ablösungen ist in Abbildung 3-7 durch die Gerade a-a gekennzeichnet. Eine Strömung mit voll ausgebildetem Ablösungsgebiet ist zu erwarten, wenn die Geometrie die Konstellation ergibt, die durch eine Wertekombination oberhalb der Linie b-b in Abbildung 3-7 liegt. Diese Übergänge stellen sich im Membranmodul aufgrund der leicht von einem ebenen Diffusor abweichenden Form bei anderen Geometrien ein.

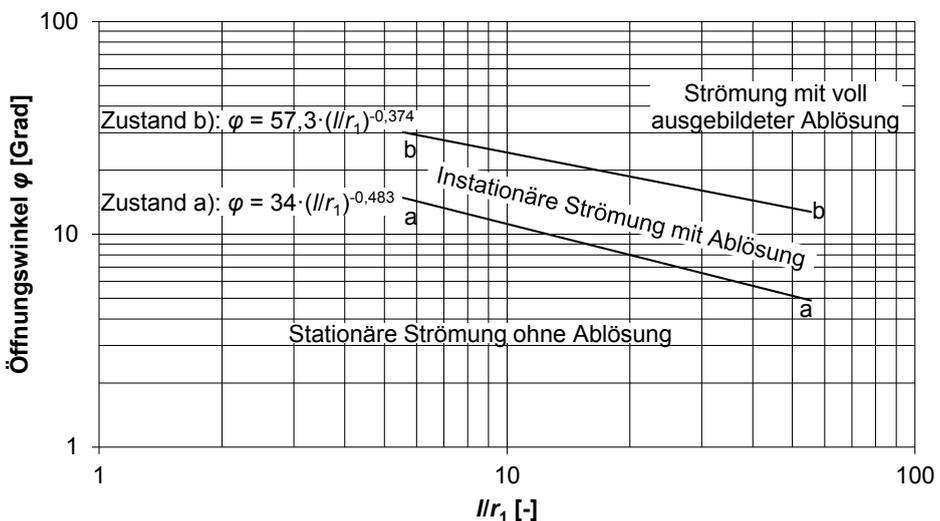


Abbildung 3-7: Abhängigkeit des Strömungszustandes von der Geometrie der Querschnittserweiterung in Anlehnung an [96]

### Maßnahmen zur Verhinderung der Strömungsbilösung

Es gibt mehrere Maßnahmen, um auch bei Öffnungswinkeln, die für ein bestimmtes Längenverhältnis  $//r_1$  oberhalb der Linie b-b in Abbildung 3-7 liegen, eine Strömungsbilösung zu verhindern. Diese Maßnahmen sind nach [90, S. 195]:

- Einsatz von Leitblechen im Einströmbereich
- Krümmung der divergierenden Wände
- Grenzschichtabsaugung
- Anbringen von Wirbelgeneratoren

Leitbleche unterteilen einen divergenten Kanal in mehrere divergente Kanäle, welche jeweils einen geringeren Öffnungswinkel haben. Dazu müssen die Leitbleche direkt am Eintritt in die Querschnittserweiterung installiert werden. Das Verhältnis aus der Länge der Leitbleche und dem Abstand zweier Leitbleche beziehungsweise dem Abstand zwischen Leitblech und Außenwand bildet das charakteristische Längenverhältnis der Leitbleche. Es wird so eingestellt, dass die Kombination aus Öffnungswinkel eines divergenten Kanals und dem charakteristischen Längenverhältnis unterhalb beziehungsweise gerade auf der Linie a-a in Abbildung 3-7 liegt [96]. Damit soll eine Ablösung der Strömung am Eintritt in die Querschnittserweiterung vermieden werden. Zusätzlich wird die Strömungsrichtung durch die Einbauten beeinflusst, sodass die Strömung in die gewünschte Richtung geleitet werden kann. Diese Maßnahme benötigt somit keine zusätzliche Energie und ist durch einfache konstruktive Elemente, die mit geringen zusätzlichen Bauteilkosten verbunden sind, zu realisieren.

Die Wände divergierender Kanäle können auch so gekrümmt sein, dass der Druckgradient beziehungsweise der Geschwindigkeitsgradient längs der Achse konstant bleiben. Diese trompetenförmigen Querschnittserweiterungen sorgen hauptsächlich für einen minimierten Druckverlust, können jedoch auch für eine Verminderung der Strömungsablösung eingesetzt werden. Allerdings wird in [96] angegeben, dass die gekrümmten Wände nur den ersten Teil der Querschnittserweiterung bilden, bis ein Öffnungswinkel der so geformten Wände von  $40^\circ$  vorliegt. Durch diesen maximalen Winkel und aufgrund der Trompeten-Form der Querschnittserweiterung vergrößert sich unter Umständen deren Länge, sodass die Packungsdichte des Membranmoduls verringert wird. Zudem ist die Gestaltung dieser Trompetenform im Gegenstrommodul erschwert durch die Geometrie der Querschnittserweiterung, die einen runden mit einem eckigen Querschnitt verbindet.

Ein weiteres Mittel, eine Strömungsablösung in der Querschnittserweiterung auch bei großen Öffnungswinkeln zu vermeiden, stellt die Grenzschichtabsaugung an den Wänden der Querschnittserweiterung dar [96]. Hierbei wird durch kleine Öffnungen innerhalb der Diffusorwände ca. 2 bis 8 % des Gesamtstroms durch einen Unterdruck abgesaugt [96]. Der Unterdruck wird dabei durch ein Gebläse erzeugt. Das Gebläse macht als zusätzliches Bauteil den Abtrennprozess komplexer und benötigt zum Betrieb Energie. Ab einer bestimmten Grenzschichtdicke am Eintritt in die Querschnittserweiterung kann eine Strömungsablösung bei gegebenem Öffnungswinkel jedoch nicht mehr verhindert werden.

Wirbelgeneratoren sind wie Leitbleche passiv arbeitende Einbauten, die die Strömung beeinflussen. Allerdings ist das Ziel der Wirbelgeneratoren, einen Teil der energiereichen Innenströmung in die Grenzschicht zu leiten und damit dafür zu sorgen, dass eine druckinduzierte Strömungsablösung verzögert wird [97]. Diese Wirbelgeneratoren werden kurz vor der Stelle angebracht, an der die Strömung ohne Wirbelgeneratoren ablösen würde. Da dies bei dem Membranmodul der Eintritt in die Querschnittserweiterung ist, müssten die Wirbelgeneratoren am Ende des Zulaufrohres angebracht werden.

In der vorliegenden Arbeit werden Leitbleche zur Beeinflussung der Strömung in das Membranmodul untersucht, da sie passiv arbeitende Einbauten sind, die nicht nur die Strömungsablösung vermeiden, sondern auch die Strömung gezielt leiten können und durch geringen konstruktiven Aufwand zu implementieren sind.

Damit ist das Modell zur fluidodynamischen und verfahrenstechnischen Bewertung des Membranmoduls und des  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses vollständig dargestellt. Für eine darüber hinausgehende wirtschaftliche Bewertung von Designalternativen wird im folgenden Kapitel 3.5 das zugrunde gelegte Kostenmodell beschrieben.

### 3.5 Kostenmodell des membranbasierten Abtrennprozesses

Reichen die aus der zuvor beschriebenen Modellierung gewonnenen technischen Bewertungskriterien für einen Vergleich von Gestaltungsalternativen nicht aus, werden die Anlagenkosten als universelle Vergleichsgröße herangezogen. Daher werden im folgenden Kapitel die grundlegenden Annahmen sowie die Gleichungen des in der vorliegenden Arbeit verwendeten Kostenmodells erläutert. Zum Vergleich verschiedener Alternativen zur Minderung beziehungsweise Vermeidung von CO<sub>2</sub>-Emissionen werden in der Literatur meist CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten herangezogen. Diese sind definiert als Gesamtkosten zur Vermeidung der Emission einer Tonne CO<sub>2</sub> und ergeben sich aus den Stromgestehungskosten (SGK), deren Berechnung zunächst beschrieben wird.

#### 3.5.1 Stromgestehungskosten des Kohlekraftwerks mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Zur Berechnung der Stromgestehungskosten werden nach Gl. 3-52 die Barwerte aller Einnahmen des Kraftwerks gleich den Barwerten aller Ausgaben über die Lebensdauer gesetzt [98]. Dabei wird der Zeitpunkt der Inbetriebnahme des Kraftwerks als Bezugszeitpunkt für die Barwerte gewählt [99, S. 117]. Das Gleichsetzen der Barwerte der Einnahmen und Ausgaben bedeutet, dass der Kapitalwert der Investition in den Neubau des Steinkohlekraftwerks mit membranbasierter CO<sub>2</sub>-Abtrennung null ist und sich die Investition damit gerade lohnt. Die Stromgestehungskosten  $SGK_t$  geben also den zeitlich konstanten durchschnittlichen Mindestpreis für den Strom an, ab dem die jährlichen Kosten sowie die Investitionssumme gedeckt sind. Folgende Kosten stellen die Ausgaben während der Bau- und Laufzeit des Kraftwerks mit angeschlossener, membranbasierter CO<sub>2</sub>-Abtrennanlage dar:

- die anfänglich anfallende Investitionssumme  $I_0$ ,
- während der Kraftwerkslaufzeit wiederkehrend anfallende Investitionssummen  $I_t$ ,
- die jährlichen Betriebs- und Instandhaltungskosten  $B \& I_t$ ,
- die jährlichen Brennstoffkosten  $BK_t$  und
- die jährlichen Zahlungen beim Kauf von Emissionsrechten  $K_{CO_2,t}$ .

Zu den Einnahmen werden in der vorliegenden Arbeit nur die fiktiven Einzahlungen aus dem Verkauf der jährlich produzierten Strommenge  $E_t$  mit den Stromgestehungskosten  $SGK_t = SGK$  als Strompreis gezählt. Erlöse aus dem Verkauf des in der Rauchgasentschwefelung anfallenden Gipses werden vernachlässigt. Weiterhin wird davon ausgegangen, dass der Kraftwerksbetreiber nur so viele Zertifikate ersteigert, wie er für den Betrieb seines Kraftwerks benötigt, sodass er keine Einnahmen aus dem Verkauf von überschüssigen CO<sub>2</sub>-Zertifikaten macht.

$$\sum_{t=0}^T E_t \cdot SGK_t \cdot (1+i)^{-t} = I_0 + \sum_{t=0}^T \left[ (I_t + B \& I_t + BK_t + K_{CO_2,t}) \cdot (1+i)^{-t} \right] \quad \text{Gl. 3-52}$$

#### Kalkulatorischer Zinssatz

Der kalkulatorische Zinssatz  $i$  ist eine entscheidende Größe in der Berechnung von Barwerten, da die Barwerte sensitiv auf Änderungen im Zinssatz reagieren, wie in Kapitel 5.2.3 analysiert wird. Häufig wird für diesen kalkulatorischen Zinssatz zur Berechnung der Barwerte von Einnahmen und Ausgaben der durchschnittliche, gewichtete Gesamtkapitalkostensatz (engl.: Weighted Average Cost of Capital, WACC) verwendet [100, S. 311]. Der WACC bildet ein Maß für die Kosten eines einzelnen Unternehmens bei Nutzung verschiedener Kapitalquellen zur Finanzierung von Investitionen [100, S. 213]. Dabei werden sowohl Fremd- als auch Eigenkapitalzinsen – gewichtet mit dem Anteil der Kapitalquelle – berücksichtigt. In

Abbildung 3-8 wird dargestellt, in welcher Bandbreite der kalkulatorische Zinssatz in diversen Studien verwendet wird. Die Werte reichen von 5 bis 12,2 %. Der WACC für Unternehmen, die dem Energie- und Rohstoffsektor zuzuordnen sind, beträgt durchschnittlich 7,2 % [101]. Um die Annahmen konsistent zu denen der Konzeptstudie des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen zu halten, wird wie in vielen anderen Studien daher der kalkulatorische Zinssatz in der vorliegenden Arbeit zu 10 % angenommen, wie in Abbildung 3-8 durch die rote Säule gekennzeichnet wird. Dieser Wert bildet, ausgenommen von einem Zinssatz von 12,2 % aus [102], welcher als maximaler Zinssatz innerhalb einer Sensitivitätsanalyse angewandt wird, die Obergrenze der Werte der Studien und sorgt somit für eine konservative Abschätzung der Kosten.

### Jährlich produzierte Strommenge

Die jährlich produzierte Strommenge ergibt sich gemäß Gl. 3-53 aus den jährlichen Volllaststunden  $t_{\text{Volllast}}$  und der elektrischen Nettoleistung  $P_{\text{el,Netto}}$  des Kraftwerks.

$$E_t = \dot{Q}_{\text{th}} \cdot \eta_{\text{el,Netto}} \cdot t_{\text{Volllast}} = P_{\text{el,Netto}} \cdot t_{\text{Volllast}} \quad \text{Gl. 3-53}$$

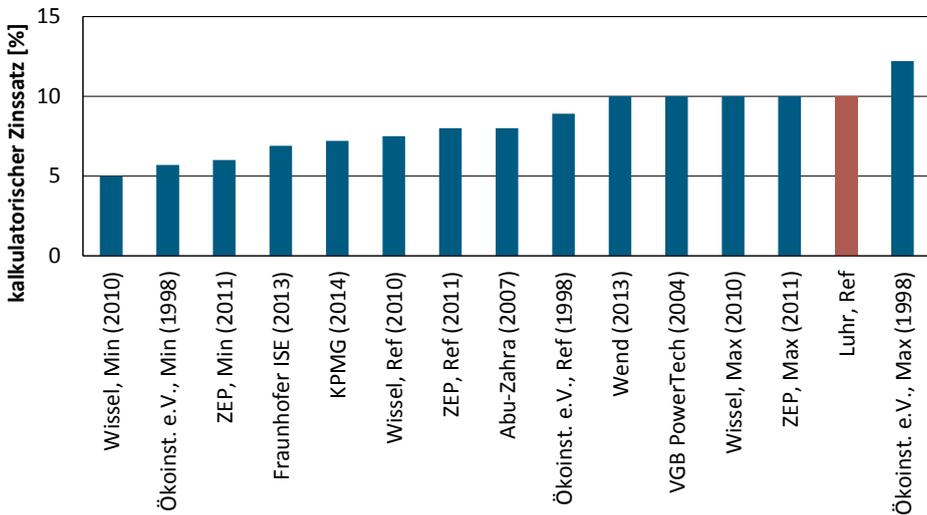


Abbildung 3-8: Kalkulatorische Zinssätze (WACC) verschiedener Studien; Daten aus [16; 101; 102; 103; 104; 105; 106; 107]

### Anfänglich anfallende Investitionssumme

Der Bau eines Kohlekraftwerks erstreckt sich gewöhnlich über mehrere Jahre, in denen die Ausgaben der gesamten Investitionssumme inklusive Bauzinsen in mehreren Raten anfallen [99]. Zur einfacheren Berechnung wird in der vorliegenden Arbeit angenommen, dass die Ausgaben der gesamten Investitionssumme zum Inbetriebnahmezeitpunkt  $t = 0$  getätigt wird, sodass Bauzinsen entfallen. Für das Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen wird die Investitionssumme von 517,1 Mio. € aus Tabelle 2-3 zu der Investitionssumme der CO<sub>2</sub>-Abtrennanlage hinzugerechnet. Da bis auf die Bereitstellung des elektrischen Stroms für den Eigenbedarf der Abtrennanlage keine Eingriffe in das Kraftwerk angenommen werden, ist

diese Investitionssumme in allen Auslegungsfällen des Abtrennprozesses als konstant anzusehen. Die anfänglich anfallenden Investitionssummen für Bauteile des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses ergeben sich nach der Berechnungsmethodik aus Abbildung 3-9. Ausgangspunkt bilden die Anschaffungskosten des Bauteils in der Standardausführung. Darauf aufbauend werden Zuschlagfaktoren für die gegebenen Betriebsbedingungen zuzüglich indirekter Kosten sowie Zuschläge für Planungsunsicherheiten und der notwendigen Peripherie angewandt. Diese im Folgenden vorgestellte Methodik orientiert sich weitgehend an der Methodik aus [108].

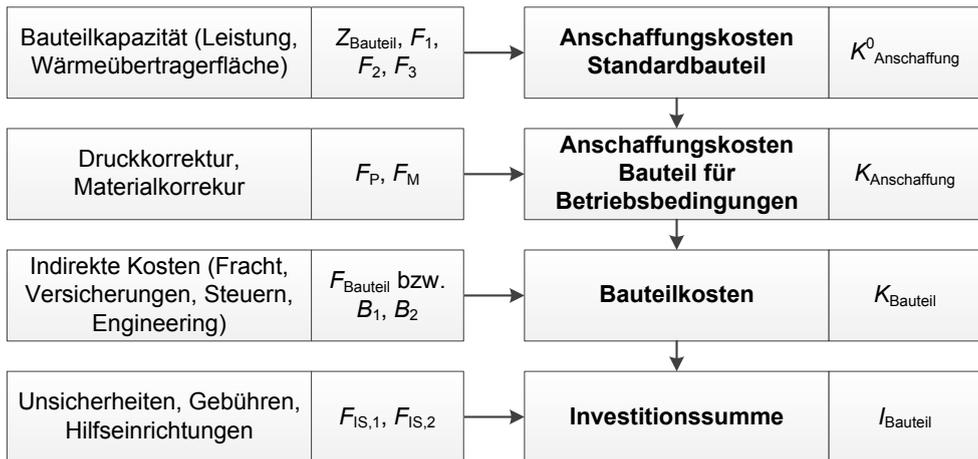


Abbildung 3-9: Methodik zur Bestimmung der Investitionssumme der Bauteile des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses in Anlehnung an [108]

Zunächst werden die Anschaffungskosten des Bauteils in einer Standardausführung  $K^0_{\text{Anschaffung}}$  über die für das jeweilige Bauteil charakteristische Kapazitätsgröße gemäß Gl. 3-54 [108] bestimmt. In der Standardausführung wird unlegierter Stahl als Standardmaterial verwendet und der Betrieb des Bauteils findet bei Umgebungsdruck statt. Daten von Anschaffungskosten diverser Bauteile sind für das Basisjahr 2001 in [108] ausgewertet und zur Bestimmung der Faktoren  $F_1, F_2$  und  $F_3$  in Gl. 3-54 verwendet worden.

$$\log_{10} K^0_{\text{Anschaffung}} = F_1 + F_2 \cdot \log_{10}(Z_{\text{Bauteil}}) + F_3 \cdot [\log_{10}(Z_{\text{Bauteil}})]^2 \quad \text{Gl. 3-54}$$

In dem in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess, welcher in Kapitel 2.5.3 vorgestellt wird, werden neben den Membranmodulen auch Kompressoren, Expander, Wärmeübertrager für die Zwischenkühlung und Zwischenerhitzung und die mit Packungen ausgestattete Kühlwäsche als Bauteile eingesetzt. Die Faktoren  $F_1, F_2$  und  $F_3$  sowie die jeweilige charakteristische Kapazitätsgröße dieser Bauteile sind in Tabelle 3-1 zusammengefasst. Die Werte der jeweiligen Kapazitätsgröße werden den Prozesssimulationen mittels Aspen Plus<sup>®</sup> entnommen. Befindet sich der Wert einer Kapazitätsgröße eines Bauteils außerhalb des Bereichs, der durch die in Tabelle 3-1 angegebenen Unter- und Obergrenze definiert wird, werden die Kosten so berechnet, als würden mehrere Anlagen mit der maximalen Kapazität parallel geschaltet beziehungsweise genau eine Anlage mit der minimalen Kapazität installiert sein. Diese Unter- und Obergrenzen sind Grenzen für die Anwendbarkeit der Kostenfunktion aus Gl. 3-54 und spiegeln nicht die Grenzen der tatsächlich herstellbaren

Anlagengrößen wider. Größere Anlagen wie beispielsweise Kompressoren mit einer maximalen Leistung von 40.000 kW sind herstellbar, aber ihre spezifischen Kosten pro kW liegen unter denen eines axialen Kompressor mit einer Leistung von 3000 kW, der mit den Faktoren aus Tabelle 3-1 bestimmt wird. Dies liegt daran, dass die Investitionssumme nicht linear mit der charakteristischen Kapazitätsgröße ansteigt. Somit werden die Investitionssummen in der vorliegenden Arbeit nach oben hin abgeschätzt.

Tabelle 3-1: Faktoren  $F_1$ ,  $F_2$  und  $F_3$  und charakteristische Kapazitätsgröße sowie Untergrenze und Obergrenze der Kapazitätsgröße zur Bestimmung der Anschaffungskosten des Bauteils in Standardausführung; Daten aus [108]

Bauteil	Kostenparameter			Charakteristische Kapazitätsgröße		
	$F_1$	$F_2$	$F_3$	$Z_{\text{Bauteil}}$	Untergrenze	Obergrenze
Axialer Kompressor	2,2897	1,3604	-0,1027	Leistung [kW]	450	3000
Motor des axialen Kompressors	2,9508	1,0688	-0,1315	Leistung [kW]	75	2600
Axiale Turbine / Expander	2,7051	1,4398	-0,1776	Leistung [kW]	100	4000
Rohrbündel-Wärmeübertrager	4,3247	-0,3030	0,1634	Wärmeübertragerfläche [m <sup>2</sup> ]	10	1000
Kolonne	3,4974	0,4485	0,1074	Kolonnenvolumen [m <sup>3</sup> ]	0,3	520
Kolonnenpackung	2,4493	0,9744	0,0055	Kolonnenvolumen [m <sup>3</sup> ]	0,03	628

Für Wärmeübertrager und Kolonnen erfolgt die Berechnung der Bauteilkosten über die Anschaffungskosten des Bauteils für Betriebsbedingungen  $K_{\text{Anschaffung}}$ . Werden Wärmeübertrager und Kolonnen nicht aus unlegiertem Stahl gefertigt oder weicht der Betriebs- vom Umgebungsdruck ab, sind die Anschaffungskosten  $K_{\text{Anschaffung}}^0$  mit den Faktoren für das eingesetzte Material  $F_M$  und den Betriebsdruck  $F_P$  zu korrigieren. Damit ergeben sich die Anschaffungskosten des Bauteils für Betriebsbedingungen über Gl. 3-55 [108]. Der Aufschlag für indirekte Kosten erfolgt gemäß dem rechten Term der Gl. 3-56 über die Faktoren  $B_1$  und  $B_2$  [108]. Zu den indirekten Kosten zählen die Kosten für die Fracht des Bauteils, die Versicherungskosten, die zu zahlenden Steuern und die Aufwendungen für das Engineering.

Für Kompressoren, Expander und Kolonnenpackungen werden Bauteilfaktoren  $F_{\text{Bauteil}}$  angegeben, sodass der mittlere Term von Gl. 3-56 zu nutzen ist. Durch den Faktor  $F_{\text{Bauteil}}$  werden Aufschläge auf die Anschaffungskosten des Bauteils in Standardausführung für Abweichungen von dieser Standardausführung und für indirekte Kosten gleichzeitig berücksichtigt.

$$K_{\text{Anschaffung}} = K_{\text{Anschaffung}}^0 \cdot F_M \cdot F_P \quad \text{Gl. 3-55}$$

$$K_{\text{Bauteil}} = K_{\text{Anschaffung}}^0 \cdot F_{\text{Bauteil}} = K_{\text{Anschaffung}}^0 \cdot B_1 + K_{\text{Anschaffung}} \cdot B_2 \quad \text{Gl. 3-56}$$

Der Druckkorrekturfaktor wird analog zu den Anschaffungskosten über einen logarithmischen Ansatz gemäß Gl. 3-57 bestimmt, wobei der Druck  $p$  als Überdruck zum Umgebungsdruck eingesetzt werden muss [108]. Die Faktoren  $F_{P,1}$ ,  $F_{P,2}$  und  $F_{P,3}$  entstammen aus einer Regression von Daten zu Kostenzuschlägen durch Druckänderungen [108]. Alle Faktoren der

verwendeten Bauteile, aus denen der Prozess aus Abbildung 2-13 aufgebaut ist, sind Tabelle 3-2 zu entnehmen.

$$\log_{10} F_P = F_{P,1} + F_{P,2} \cdot \log_{10}(p) + F_{P,3} \cdot [\log_{10}(p)]^2 \quad \text{Gl. 3-57}$$

Tabelle 3-2: Materialfaktoren, Druckfaktoren und Bauteilfaktoren zur Bestimmung der Bauteilkosten für die im CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess verwendeten Bauteile, die nicht in Standardausführung gefertigt werden; Daten aus [108]

Bauteil	Materialfaktor (Gl. 3-55)		Druckfaktor (Gl. 3-57)				Bauteilfaktor (Gl. 3-56)		
	F <sub>M</sub>	Material	F <sub>P,1</sub>	F <sub>P,2</sub>	F <sub>P,3</sub>	Druckbereich [bar Überdruck]	B <sub>1</sub>	B <sub>2</sub>	F <sub>Bauteil</sub>
Axialer Kompressor	-	Edelstahl	0	0	0	-	-	-	8,05
Axiale Turbine/Expander	-	Edelstahl	0	0	0	-	-	-	6,1
Rohrbündel-Wärmeübertrager gasförmig/gasförmig	2,75	Edelstahl, Edelstahl	0	0	0	p < 5	1,74	1,55	-
			0,03881	-0,11272	0,08183	5 < p < 140			
Rohrbündel-Wärmeübertrager gasförmig/flüssig	1,8	Edelstahl, unlegierter Stahl	0	0	0	p < 5	1,74	1,55	-
			0,03881	-0,11272	0,08183	5 < p < 140			
Kolonne	1,75	Edelstahl	0	0	0	-	2,25	1,82	-
Kolonnenpackung	-	Polyethylen	0	0	0	-	-	-	1

Die gesamte Investitionssumme eines Bauteils ergibt sich aus den Bauteilkosten zuzüglich mehrerer Zuschläge gemäß Gl. 3-58 [73]. Für Unsicherheiten in der Kostenabschätzung bezüglich der gewählten Zuschlagfaktoren und der realen Ausgestaltung des Prozesses wird ein Zuschlag auf die Bauteilkosten von 15 % veranschlagt [108]. Weiterhin werden 3 % der Bauteilkosten für anfallende Gebühren berücksichtigt, sodass der Gesamtzuschlagfaktor auf die Bauteilkosten  $F_{IS,1}=1,18$  beträgt [108]. Kosten für Hilfseinrichtungen wie Nebengebäude, die Grundstückerschließung und für Sonstiges fallen unabhängig von dem eingesetzten Material und dem für die Konstruktion zugrunde gelegten Betriebsdruck des Bauteils an. Somit wird ein Aufschlag auf die Bauteilkosten der Standardausführung  $K^0_{Bauteil}$  gerechnet. Dies bedeutet, dass zur Ermittlung der Bauteilkosten unlegierter Stahl als Material und ein Druckfaktor von eins angenommen werden. Dieser Aufschlag beträgt 50 %, sodass sich ein Zuschlagfaktor auf die Bauteilkosten der Standardausführung von  $F_{IS,2}=0,5$  ergibt.

$$I_{Bauteil} = 1,18 \cdot K_{Bauteil} + 0,5 \cdot K^0_{Bauteil} \quad \text{Gl. 3-58}$$

Die Investitionssumme für das mit Membrantaschen bestückte Membranmodul ergibt sich aus der Investitionssumme für die Membran  $I_{Membran}$  und der Investitionssumme für das nack-

te Modul  $I_{\text{Membranmodul,ohneMembran}}$ . Bei der Kostenanalyse der vorliegenden Arbeit werden die beiden Kosten für die Membran und das Modul getrennt aufgeführt, damit deren Anteile an der gesamten Investitionssumme gesondert angegeben werden können. Ihre Berechnung weicht von der in Abbildung 3-9 dargestellten Methodik ab, da für Membranmodule noch keine Auswertung von Kostendaten erfolgt ist, die eine Berechnung über Gl. 3-54 zulässt. Die Kosten für die Membran werden über den Membranpreis je Quadratmeter benötigter – also aktiver – Membranfläche bestimmt. Die benötigte Membranfläche geht aus den Prozesssimulationen mittels Aspen Plus<sup>®</sup> hervor. Dabei wird – wenn nicht anders erwähnt – ein Membranpreis  $P_{\text{Membran}}$  von  $50 \text{ €} \cdot \text{m}^{-2}$  unterstellt [109]. Damit ergibt sich die Investitionssumme der Membran gemäß Gl. 3-59. Die Investitionssumme des Membranmoduls wird ebenfalls in Abhängigkeit von der Membranfläche  $A_{\text{Membran}}$  berechnet. Die Abschätzung der Kosten des Membranmoduls erfolgt über eine Hochskalierung von Referenzkosten über die Kapazitätsmethode und der Membranfläche als Kapazitätsgröße gemäß Gl. 3-60. Für eine Membranfläche von  $2000 \text{ m}^2$  sind Kosten eines Membranmoduls, welches bei der Ammoniakherstellung zur Wasserstoffrückgewinnung genutzt wird, in Höhe von  $250.000 \text{ US\$}_{1994}$  ( $\triangleq 308.000 \text{ €}_{2012}$ ) bekannt [110, S. 69]. Der Degressionskoeffizient wird mit  $0,7$  angesetzt [110, S. 69]. Der degressive Anstieg der Investitionssumme mit steigender Membranfläche ist im vorliegenden Fall mit Skaleneffekten begründet. Skaleneffekte – auch Economies of Scale genannt – berücksichtigen die Tatsache, dass durch eine wachsende Jahresproduktion Prozesse besser automatisiert sind, die Fixkosten bei der Herstellung nicht linear mit der Produktionsmenge wachsen und auf eine effizientere Logistik zugegriffen werden kann [111, S. 93].

$$I_{\text{Membran}} = A_{\text{Membran}} \cdot P_{\text{Membran}} \quad \text{Gl. 3-59}$$

$$I_{\text{Membranmodul,ohneMembran}} = \left( \frac{A_{\text{Membran}}}{2000} \right)^{0,7} \cdot 308.000 \text{ €}_{2012} \quad \text{Gl. 3-60}$$

### Wiederkehrend anfallende Investitionssumme

Die wiederkehrend anfallende Investitionssumme  $I_t$  entspricht der Investitionssumme für die regelmäßige Erneuerung der Membran. Die gesamte Membranfläche muss nach Ende der Lebensdauer der Membran ausgetauscht werden. Die Lebensdauer der Membran wird in der vorliegenden Arbeit mit fünf Jahren angesetzt [112]. Dabei wird eine auf das Membranmaterial abgestimmte Prozessführung berücksichtigt, bei der die Membran beschädigende Komponenten aus dem Rauchgas vor Eintritt in den  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess weitgehend entfernt werden. Somit fallen alle fünf Jahre Ausgaben für die Erneuerung der Membran an. Diese Ausgaben werden wiederum über den Membranpreis pro Quadratmeter Membranfläche von  $50 \text{ €} \cdot \text{m}^{-2}$  bestimmt.

### Betriebs- und Instandhaltungskosten

Die Betriebs- und Instandhaltungskosten  $B\&I_t$  können in variable und fixe Kosten unterteilt werden. Da die Brennstoffkosten von der thermischen Leistung des Kraftwerks abhängen und diese bei Teillast geringer ist, werden die Brennstoffkosten gesondert berücksichtigt. Auch die  $\text{CO}_2$ -Zertifikatkosten werden gesondert ausgewiesen, da je nach Abtrenngrad der  $\text{CO}_2$ -Abtrennung andere  $\text{CO}_2$ -Emissionen entstehen. Zu den übrigen variablen Betriebskosten zählen die Kosten für Betriebs- und Hilfsstoffe, die Entsorgungskosten für Asche und Abwasser sowie die Kosten für Ersatzteile. Betriebs- und Hilfsstoffe werden vor allem für die konventionelle Rauchgasreinigung benötigt. Hier werden Katalysatoren und Chemikalien eingesetzt. Doch auch die Nutzung von Prozess- und Kühlwasser fallen unter die variablen Be-

triebskosten. Die fixen Betriebs- und Instandhaltungskosten setzen sich aus den Personalkosten, den Kosten für die Wartung und Instandhaltung sowie den Steuer- und Versicherungskosten zusammen. Die detaillierte Quantifizierung dieser Kostenposten setzt eine genaue Kenntnis und Auslegung des Kraftwerks inklusive CO<sub>2</sub>-Abtrennanlage voraus. Für das Kostenmodell der vorliegenden Arbeit werden die Betriebs- und Instandhaltungskosten über einen Prozentsatz an den Investitionskosten abgeschätzt. Dabei wird angenommen, dass die Betriebs- und Instandhaltungskosten für die Kompressoren, Wärmeübertrager und Expander 3,6 % der Investitionskosten dieser Anlagen ausmachen [58; 113]. Membranmodule beinhalten keine drehenden Bauteile, müssen jedoch regelmäßig kontrolliert werden, falls aufgrund von Verblockungen durch Staubablagerungen die Performance eines Membranmoduls nachlässt. Weiterhin sind die wiederkehrenden Membranwechsel in den Instandhaltungskosten enthalten. Damit sind Membranmodule ähnlich wartungsintensiv wie die übrigen Anlagen im Abtrennprozess und auch die Wartungskosten in ähnlichen Größenordnungen. Da Membranmodule jedoch ohne Betriebs- und Hilfsmittel betrieben werden, sind ihre variablen Betriebskosten nahezu null. Dies führt dazu, dass die Betriebs- und Instandhaltungskosten mit einem Prozentsatz von 1 % der Investitionssumme der mit Membranen bestückten Membranmodule angesetzt werden [30; 113]. Angesichts der hohen Investitionssumme der mit Membranen bestückten Membranmodule sind die Instandhaltungskosten damit ausreichend abgedeckt. Es wird angenommen, dass hauptsächlich die Personalkosten über die Laufzeit des Kraftwerks zunehmen. Für die gesamten Betriebs- und Instandhaltungskosten wird daher mit einer jährlichen Preissteigerungsrate von 0,5 % gerechnet [16, S. 103]. Somit werden die gesamten Betriebs- und Instandhaltungskosten gemäß Gl. 3-61 bestimmt.

$$B \& I_t = \left[ 0,036 \cdot (I_{\text{Kompressor}} + I_{\text{WÜ}} + I_{\text{Expander}}) + 0,01 \cdot (I_{\text{Membranmodul}}) \right] \cdot 1,005^t \quad \text{Gl. 3-61}$$

Für die Betriebs- und Instandhaltungskosten des RKW NRW werden die in Tabelle 2-3 aufgeführten Kosten in Höhe von 7,8 Mio. €·a<sup>-1</sup> angesetzt. Auch hier wird eine jährliche Preissteigerung von 0,5 % angenommen.

### Brennstoffkosten

Die Brennstoffkosten ergeben sich aus der zur Bereitstellung der thermischen Energie verbrannten Kohle je Jahr und dem Kohlepreis gemäß Gl. 3-62. Für den Kohlepreis wird in der vorliegenden Arbeit der durchschnittliche Börsenpreis von Steinkohle für das Jahr 2014 von 43,5 €·Kohle<sup>t<sup>-1</sup></sup> beziehungsweise 1,74 €·GJ<sup>-1</sup> angenommen [114]. Dieser deckt sich mit dem in [103] und [106] angenommenen Preisen von 2 €·GJ<sup>-1</sup> beziehungsweise 1,6 €·GJ<sup>-1</sup>. In verschiedenen Studien werden jährliche Preissteigerungsraten für den Kohlepreis von 1 bis 2 % angenommen [115; 116, S. 41]. Die Preissteigerung ist mit der schlechter werdenden Kohleminenproduktivität zu erklären, die zum Teil durch technologischen Fortschritt kompensiert werden kann. Weiterhin wird angenommen, dass die Nachfrage an Kohle in großen Abnehmergebieten langfristig zurückgehen wird, da auch in Ländern wie China in der langen Frist auf erneuerbare Energien gesetzt wird [117]. Dieser Effekt wirkt einer größeren Preissteigerungsrate entgegen, sodass in der vorliegenden Arbeit eine jährliche Steigerungsrate von 1 % angesetzt wird.

$$BK_t = (P_{\text{Kohle}} \cdot \dot{m}_{\text{Kohle}}) \cdot 1,01^t = \left( \frac{P_{\text{Kohle}} \cdot \dot{Q}_{\text{th}} \cdot t_{\text{Volllast}}}{H_{\text{u,Kohle}}} \right) \cdot 1,01^t \quad \text{Gl. 3-62}$$

## CO<sub>2</sub>-Zertifikatkosten

Für jede Tonne emittiertes CO<sub>2</sub> ist vom Kraftwerksbetreiber ein CO<sub>2</sub>-Zertifikat zu erwerben. Dabei kann der Kraftwerksbetreiber entweder bei der Zuteilung Zertifikate erhalten oder nachträglich fehlende Zertifikate beispielsweise an der European Energy Exchange erwerben. Die jährlichen Ausgaben beim Kauf von Emissionsrechten – also die CO<sub>2</sub>-Zertifikatkosten – ergeben sich aus dem CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreis  $P_{\text{CO}_2}$  des Betriebsjahres, der sich durch Angebot und Nachfrage bildet, und den jährlichen CO<sub>2</sub>-Emissionen. Der CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreis ist – wie in Abbildung 3-10 (links) dargestellt – zwischen Oktober 2012 und Juli 2013 von ca.  $8 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  auf ca.  $4 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  gefallen. Dies liegt zum einen an der damals geltenden, weitgehend kostenlosen Zuteilung und zum anderen an der zu hoch gewählten Obergrenze der Gesamtemissionsmenge [118]. Seit dem Jahr 2013 gilt für die meisten EU-Staaten, dass die Kraftwerksbetreiber in jedem Betriebsjahr 100 % der Zertifikate ersteigern müssen [119], sodass der Preis zwischen Juli 2013 und Februar 2015 mit einer durchschnittlichen jährlichen Steigerungsrate von  $1,4 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$  von  $4 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  auf  $7 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  gestiegen ist. Diese Steigerungsrate entspricht auch der Steigerungsrate der Mittelwerte der Prognosen verschiedener Studien zur zukünftigen Entwicklung des CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreises, die in Abbildung 3-10 (rechts) durch die durchgezogene Linie verbunden sind. Zwischen den Jahren 2020 und 2050 steigen die jeweils minimalen Prognosewerte aller Studien um  $29 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ , sodass sich eine geringere Steigerungsrate von ca.  $1 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$  ergibt, die auch in der vorliegenden Arbeit als konservative Abschätzung der zeitlichen Entwicklung des CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreises angenommen wird. Allerdings wird davon ausgegangen, dass der Zertifikatspreis zum Zeitpunkt der Inbetriebnahme des Kraftwerks – also der Ausgangspunkt für die zeitliche Entwicklung des CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreises – dem Zertifikatspreis von Anfang des Jahres 2015 entspricht. Dieser beträgt  $7 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  (Stand Februar 2015) [120], sodass sich bei der angenommenen Laufzeit von 35 Jahren die in Abbildung 3-10 (rechts) mit der gestrichelten Linie dargestellte zeitliche Entwicklung ergibt.

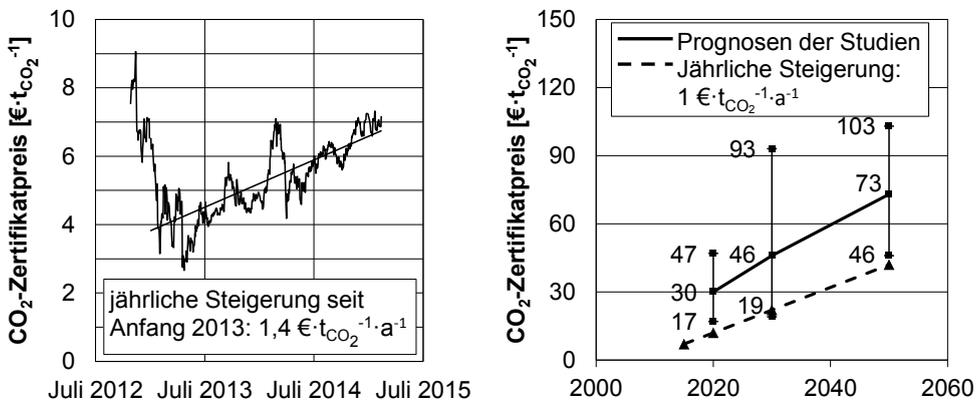


Abbildung 3-10: Entwicklung des CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreises von Oktober 2012 bis Februar 2015 (links; Daten aus [121]); Prognosen zur zeitlichen Entwicklung des CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreises verschiedener Studien (rechts; Daten aus [11, S. 98]), dargestellt sind jeweils Minimum, Mittelwert und Maximum der Studien für die Jahre 2020, 2030 und 2050 sowie eine eigene Prognose mit einer jährlichen Steigerungsrate von  $1 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$  beginnend bei einem Zertifikatspreis von Anfang 2015 von  $7 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  (gestrichelte Linie)

Die jährlichen CO<sub>2</sub>-Emissionen sind abhängig von dem CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad und der jährlichen CO<sub>2</sub>-Produktion. Die jährliche CO<sub>2</sub>-Produktion  $\dot{m}_{\text{CO}_2, \text{prod}}$  ist wiederum abhängig von der thermischen Leistung des Kraftwerks, den Volllaststunden und der verwendeten Kohle. Es ergeben sich die CO<sub>2</sub>-Zertifikatkosten gemäß Gl. 3-63.

$$K_{\text{CO}_2, t} = \dot{m}_{\text{CO}_2, \text{prod}} \cdot (1 - Ab_{\text{CO}_2, \text{Prozess}}) \cdot (P_{\text{CO}_2} + 1 \text{ €} \cdot t_{\text{CO}_2}^{-1} \cdot t) \quad \text{Gl. 3-63}$$

#### Weitere Annahmen

Die Lebensdauer des Steinkohlekraftwerks mit angeschlossener CO<sub>2</sub>-Abtrennung wird in der vorliegenden Arbeit mit 35 Jahren angenommen. Dies entspricht der Randbedingung der Konzeptstudie des in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten RKW NRW [16]. Andere Studien gehen von einer Lebensdauer von 40 bis 45 Jahren aus [103; 105; 122]. Eine höhere Lebensdauer als 35 Jahre ist laut aktueller Kraftwerksliste der Bundesnetzagentur in der Praxis durchaus üblich [123]. Kraftwerke mit längerer Lebensdauer produzieren mehr Strom zu niedrigen Kosten, sodass gemäß Gl. 3-52 die Stromgestehungskosten durch die erhöhte produzierte Strommenge sinken.

Ein weiterer entscheidender Parameter in der Berechnung der SGK sind die durchschnittlichen Volllaststunden, mit denen das Kraftwerk betrieben wird. Je höher diese sind, desto mehr Strom wird jährlich produziert. Zwar steigen mit höheren Volllaststunden auch die Kosten für den Brennstoff und die CO<sub>2</sub>-Zertifikate, aber die SGK sinken bei besserer Auslastung des Kraftwerks durch die gesteigerte produzierte Strommenge. In Zukunft wird durch die zunehmende Einspeisung aus erneuerbaren Energien die Auslastung der konventionellen Kraftwerke voraussichtlich sinken. So sinken in [105] die Volllaststunden von 6500 h im Jahr 2013 auf 4100 h im Jahr 2050. In anderen Studien wird eine hohe Auslastung von bis zu 7500 h angenommen [103; 106]. Da die Konzeptstudie zum RKW NRW von 7500 Volllaststunden in den ersten 17 Betriebsjahren und 5500 Volllaststunden in den letzten 18 Betriebsjahren ausgeht [16], wird in der vorliegenden Arbeit – wenn nicht anders erwähnt – mit durchschnittlichen, jährlichen Volllaststunden von 6500 h gerechnet. Damit sind die Annahmen konsistent zu denen der Konzeptstudie des RKW NRW gehalten.

In der vorliegenden Arbeit werden Annahmen zu Kosten aus der Literatur mit dem Chemical Engineering Plant Cost Index (CEPCI) auf das Jahr 2012 umgerechnet. Der CEPCI ist ein dimensionsloses Inflationsbarometer für die Anlagenkosten der chemischen Industrie und dient zur Anpassung der Anlagenkosten von einer Periode in die andere bei Kostenanalysen und -berechnungen. Für das Jahr 2012 beträgt er 584,6 [124]. Im Jahr 2013 sind die Preise für chemische Anlagen wieder leicht gesunken, wie in der zeitlichen Entwicklung des CEPCI in Abbildung 8-4 im Anhang 8.8 erkennbar ist. Das Basisjahr 2012 wird für die Kostenkalkulation der vorliegenden Arbeit gewählt, um möglichst hohe Investitionssummen für die Bauteile und damit eine konservative Abschätzung zu erhalten. Dollarwerte werden mit dem durchschnittlichen Dollarkurs des Jahres 2012 von 1,28 US\$<sub>2012</sub> · €<sub>2012</sub><sup>-1</sup> umgerechnet [44].

Ein direkter Vergleich von Stromgestehungskosten verschiedener Kraftwerke ist jedoch nur möglich, wenn die Rahmenbedingungen für beide Kraftwerke gleich gewählt werden. Die Wahl der jährlichen Volllaststunden und des kalkulatorischen Zinssatzes hat zum Beispiel großen Einfluss auf die Stromgestehungskosten. Zudem ist entscheidend, welches Jahr als Basisjahr für die Kostenberechnung gewählt wird, da die Werte gegebenenfalls auf ein gemeinsames Bezugsjahr mit dem oben erwähnten CEPCI umgerechnet werden müssen.

Alle wichtigen Annahmen für die Berechnung der Stromgestehungskosten sind in Tabelle 3-3 zusammengefasst.

Tabelle 3-3: Zusammenfassung der Annahmen zur Berechnung der Stromgestehungskosten

<b>Annahmen zu Investitionssummen</b>	
Membranpreis	50 €·m <sup>-2</sup>
Bauteilkosten	Abhängig von der Kapazitätsgröße, dem Material und des Druckes
Zuschlag für Unsicherheiten	15 % auf Bauteilkosten
Zuschlag für Gebühren	3 % auf Bauteilkosten
Zuschlag für Hilfseinrichtungen wie Nebengebäude, die Grundstückerschließung und für Sonstiges	50 % der Bauteilkosten im Standardzustand
<b>Annahmen zu jährlichen Kosten</b>	
Anfänglicher Kohlepreis	43,5 €·t <sup>-1</sup> <sub>Kohle</sub>
Eskalation Kohlepreis	1 %·a <sup>-1</sup>
Anfänglicher CO <sub>2</sub> -Zertifikatpreis	7 €·t <sup>-1</sup> <sub>CO<sub>2</sub></sub>
Eskalation CO <sub>2</sub> -Zertifikatpreis	1 €·t <sup>-1</sup> <sub>CO<sub>2</sub></sub> ·a <sup>-1</sup>
Betriebs- und Instandhaltungskosten – Membran	1 % der Investitionssumme
Betriebs- und Instandhaltungskosten – Sonstige	3,6 % der Investitionssumme
Eskalation Betriebs- und Instandhaltungskosten	0,5 %·a <sup>-1</sup>
<b>Sonstige Annahmen</b>	
Kalkulatorischer Zinssatz	10 %
Lebensdauer Kraftwerk	35 Jahre
Lebensdauer Membran	5 Jahre
Durchschnittliche, jährliche Volllaststunden	6500 h
Basisjahr für die Kostenkalkulation	2012

### 3.5.2 CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten

Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten sind die Kosten, die anfallen, um die Emission einer Tonne CO<sub>2</sub> zu vermeiden. Diese CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten stehen in Konkurrenz zu den Kosten für den Erwerb von CO<sub>2</sub>-Zertifikaten, sodass die Investition in eine CO<sub>2</sub>-Abtrennanlage wirtschaftlich ist, wenn die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten niedriger als der CO<sub>2</sub>-Zertifikatpreis sind. Zur Ermittlung der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten dienen die Stromgestehungskosten als Ausgangspunkt. Diese werden für das Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen (RWK NRW) mit und ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennanlage bestimmt. Dabei werden die Kosten für den Erwerb der CO<sub>2</sub>-Zertifikate nicht berücksichtigt, da der Erwerb bei der Vermeidung der Emissionen nicht notwendig ist. Somit sind die Zertifikatkosten nicht in den Vermeidungskosten enthalten, sondern eher als Opportunitätskosten zu verstehen. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten  $K_{\text{CO}_2, \text{vermieden}}$  werden gemäß Gl. 3-64 berechnet.

$$K_{\text{CO}_2, \text{vermieden}} = \frac{(SGK_{\text{RKW NRW} + \text{CCUS}} - SGK_{\text{RKW NRW}})_{\text{ohne CO}_2\text{-Zertifikatkosten}}}{\dot{m}_{\text{CO}_2, \text{vermieden, spezifisch}}} \quad \text{Gl. 3-64}$$

Die spezifischen, vermiedenen CO<sub>2</sub>-Emissionen können über den Vermeidungsgrad aus Gl. 2-8 und den spezifischen, jährlich produzierten CO<sub>2</sub>-Massenstrom bestimmt werden.

Zu den CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten zählen auch die Kosten für den Transport und die Weiterverwendung des abgetrennten CO<sub>2</sub>. Die Kosten für den Transport des CO<sub>2</sub> zur Stätte der Weiterverwendung sind von der Art des Transportes – per Pipeline oder verflüssigt per Schiff –, von der Transportkapazität und von der Transportdistanz abhängig. Sie liegen zwischen 1,5 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> für den Transport per Onshore-Pipeline mit einer angenommenen Distanz von 180 km und einer Kapazität von 20 Mio. t<sub>CO<sub>2</sub></sub>·a<sup>-1</sup> und 51,7 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> für den Transport per Offshore-Pipeline mit einer angenommenen Distanz von 1500 km und einer Kapazität von 2,5 Mio. t<sub>CO<sub>2</sub></sub>·a<sup>-1</sup> [10]. Zusätzlich betragen die Kosten für die CO<sub>2</sub>-Speicherung zwischen 1,5 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> und 20 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> [10]. Da die Art des CO<sub>2</sub>-Transports und die Lage des CO<sub>2</sub>-Abtrennortes in Bezug auf den CO<sub>2</sub>-Weiterverwendungsort in der vorliegenden Arbeit jedoch nicht spezifiziert werden, werden die Kosten dieser Schritte der CCUS-Kette nicht in die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten einbezogen.

Das in Kapitel 3 vorgestellte Gesamtmodell zur Modulauslegung wird in den folgenden Kapiteln 4 und 5 angewandt. In Kapitel 4 werden das fluiddynamische Modell sowie das Modell zur Beschreibung der Permeation in den Strömungssimulationen verwendet, um die Modulgestaltung strömungstechnisch zu optimieren. Das Modell des Membranmoduls, welches in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup> programmiert ist, wird für die Auslegung des Moduls im Kraftwerksmaßstab mittels Prozesssimulationen in Aspen Plus<sup>®</sup> genutzt, die in Kapitel 5 beschrieben wird.

## 4 Strömungsoptimierte Modulgestaltung des Prototyp-Moduls

Ein neues Design eines Taschenmoduls, welches fast vollständig im Gegenstrom betrieben werden kann, verspricht eine Verbesserung gegenüber konventionellen Modulformen für Flachmembranen hinsichtlich der für eine bestimmte Membranfläche erzielbaren Kombination aus Abtrenngrad und CO<sub>2</sub>-Reinheit [34]. Dieses wird in der vorliegenden Arbeit fluid-dynamisch und ökonomisch untersucht. Die fluiddynamischen Untersuchungen und Optimierungen werden im folgenden Kapitel beschrieben. Diese werden an einem Modul mit der Größe eines Prototyps durchgeführt. Der Aufbau und die Strömungssimulationen des Prototyp-Moduls in Standardausführung ohne Einbauten und Optimierungsmaßnahmen werden in Kapitel 4.1 beschrieben. Optimierungsmaßnahmen bezüglich der Zulaufströmung in das Membranmodul werden in Kapitel 4.2 analysiert. In Kapitel 4.3 werden die Auswirkungen von Bypass-Strömungen im Membranmodul erläutert.

### 4.1 Prototyp-Modul in Standardausführung

Das Prototyp-Modul wird von der Geometrie so ausgelegt, dass Strömungssimulationen in ANSYS® FLUENT® für dieses Modul mit vertretbarem Zeitaufwand von drei bis fünf Tagen je Simulation durchgeführt werden können. Weiterhin sollen die Abmessungen des Prototyp-Moduls so gewählt werden, dass ein reales Modul zum Betrieb in einer vorhandenen Testanlage gebaut werden kann. Der Aufbau mit den wesentlichen Geometriegrößen wird in Kapitel 4.1.1 beschrieben. Dieses Modul ist in Standardausführung – also ohne jegliche Optimierungsmaßnahmen zur verbesserten Strömungsführung – konzipiert. Die verwendeten Modelle zur Modellierung des Druckverlustes und der Permeation werden in Kapitel 4.1.2 verifiziert. Die Ergebnisse der Strömungssimulationen dienen als Referenz zur Beurteilung der Optimierungsmaßnahmen. Sie werden weiterhin mit den Ergebnissen der Simulationen des Prototyp-Moduls in Aspen Plus®, bei denen eine ideale Überströmung und vollständige Ausnutzung der Membranfläche angenommen wird, in Kapitel 4.1.3 verglichen.

#### 4.1.1 Prototyp-Aufbau des Gegenstrommoduls

Der prinzipielle Aufbau des Prototyp-Moduls für den Gegenstrombetrieb ist in Abbildung 4-1 dargestellt. Es ist in drei Bereiche eingeteilt. Im Zulaubereich strömt der Feed in das Membranmodul ein und wird durch die Querschnittserweiterung verzögert. Ein Teil des Gasgemisches permeiert im Abtrennbereich durch die Flachmembranen, die im Membranstapel angeordnet sind. Das Permeat verlässt das Membranmodul über die Permeatrohre. Der nicht abgetrennte Teil – also das Retentat – strömt im Ablaufbereich durch eine Querschnittsverjüngung und von dort aus dem Membranmodul.

Die Abmessungen des Moduls in Standardausführung sind Abbildung 4-2 zu entnehmen. Das Gasgemisch tritt an der Feedseite in das Membranmodul ein. Das Zulaufrohr des Feeds hat bei dem Prototyp-Modul einen Durchmesser von 36 mm. Dieser Durchmesser resultiert aus dem Durchmesser des Anschlussrohres, welches das Membranmodul mit dem übrigen Equipment der Pilotanlage verbindet. Die Strömung wird durch die Querschnittserweiterung verzögert. Die Länge der Querschnittserweiterung zwischen Zulaufrohr und Membranstapel misst im Prototyp-Modul in Standardausführung 200 mm. Am Ende der Querschnittserweiterung trifft die Strömung auf den Membranstapel. Der Membranstapel ist alternierend aus Membrantaschen und Feedspacern, die den Feedkanal zwischen den Membrantaschen definieren, aufgebaut. Eine Membrantasche ist 221 mm breit und 402 mm lang. Dabei sind jeweils 5 mm an den Rändern rund um die Membrantasche nicht nutzbare Membranfläche, da

dort die zwei Membranflächen, die zusammen mit dem von ihnen eingeschlossenen Permeatspacer die Tasche bilden, thermisch verschweißt sind. Die Dicke der thermischen Verschweißung beträgt ca. 0,3 mm. Diese Taschengröße entspricht den Abmessungen der Anlage zur Herstellung einer Membrantasche beim Helmholtz-Zentrum Geesthacht.

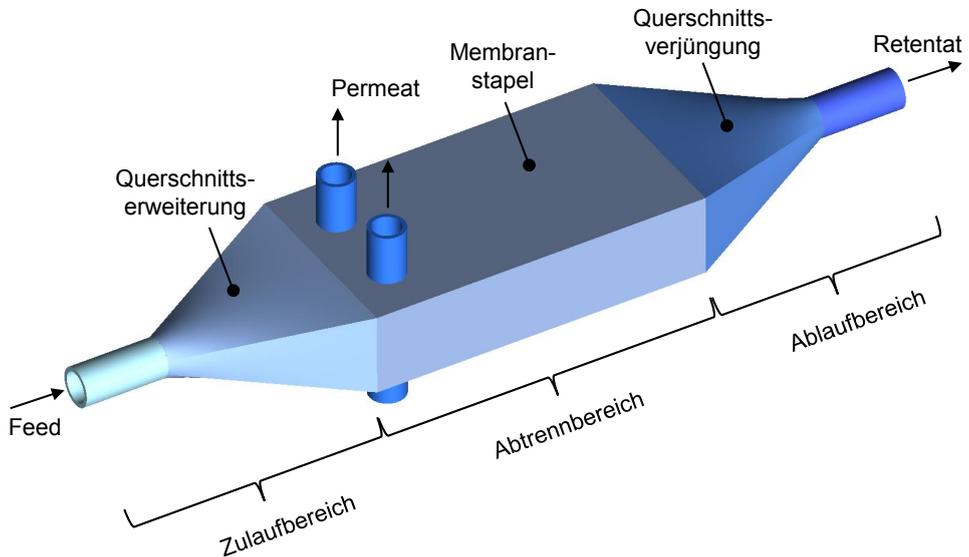


Abbildung 4-1: Aufbau des Prototyp-Moduls für den Gegenstrombetrieb in Standardausführung

Während die Feedkanäle im Prototyp-Modul jeweils 1 mm hoch sind, sind die Spacer im Inneren der Membrantasche zur Definition der Permeatkanäle 1,5 mm hoch. Die Höhen ergeben sich aus den verwendeten Dichtungs- und Drainageringen in dem Prototyp-Modul der Pilotanlage. Insgesamt sind 35 Membrantaschen verbaut, sodass die Gesamthöhe des Membranstapels 88,5 mm beträgt, wenn die erste und letzte Stapelunit jeweils ein Feedkanal ist. Der aus der Länge der Querschnittserweiterung und dem Verhältnis von Anfangs- und Endquerschnitt der Erweiterung resultierende Öffnungswinkel beträgt im Prototyp-Modul ca. 50°. Ein Teil des Gasgemisches permeiert durch die Membranen. Innerhalb der Membrantaschen strömt das Permeat in Richtung perforierter Permeatrohre. Die zwei Permeatrohre sind am Anfang des Membranstapels mit einem Abstand von 50 mm zum Ende der Querschnittserweiterung positioniert. Dadurch ist gewährleistet, dass das Modul nahezu komplett im Gegenstrom betrieben werden kann. Eine Positionierung direkt am Ende der Querschnittserweiterung ist aus Gründen der Dichtung des Feedkanals gegenüber dem Permeatrohr nicht möglich. Die Dichtung des Permeatvolumens im Permeatrohr gegenüber dem Feedraum ist über Dichtungsringe realisiert. Die Permeatrohre haben einen Außendurchmesser von 33 mm. Da die Dichtungen zusätzlich 1 mm breit sind, vergrößert sich der Durchmesser des umströmten Zylinders in den CFD-Simulationen auf 35 mm. Auf der Permeatseite liegen um die Permeatrohre Drainageringe, damit das Permeat besser zu den Perforationen im Permeatrohr geleitet werden kann. Sie dienen gleichzeitig als Stützelement zwischen zwei Dichtungsringen. Zum seitlichen Modulgehäuserand beträgt der Abstand der Permeatrohre jeweils 58,5 mm und zum Anfang des Membranstapels 50 mm.

Das Retentat strömt aus dem Membranstapel durch die Querschnittsverjüngung zum Retentatablauf. Das Ablaufrohr hat wie das Zulaufrohr im Prototyp-Modul einen Durchmesser von 36 mm. Insgesamt beträgt die Membranfläche des Moduls 5,66 m<sup>2</sup>. Damit ergibt sich in dieser Ausführung bei einer Wandstärke des Gehäuses von 8 mm [125] eine Packungsdichte von 400 m<sup>2</sup> m<sup>-3</sup>. Diese Wandstärke ist bei Drücken von bis zu 4 bar im Gehäuseinneren nach der Auslegung gemäß den AD 2000-Regelwerken, die die Konstruktion und Dimensionierung von Druckbehälter regelt, einzuhalten.

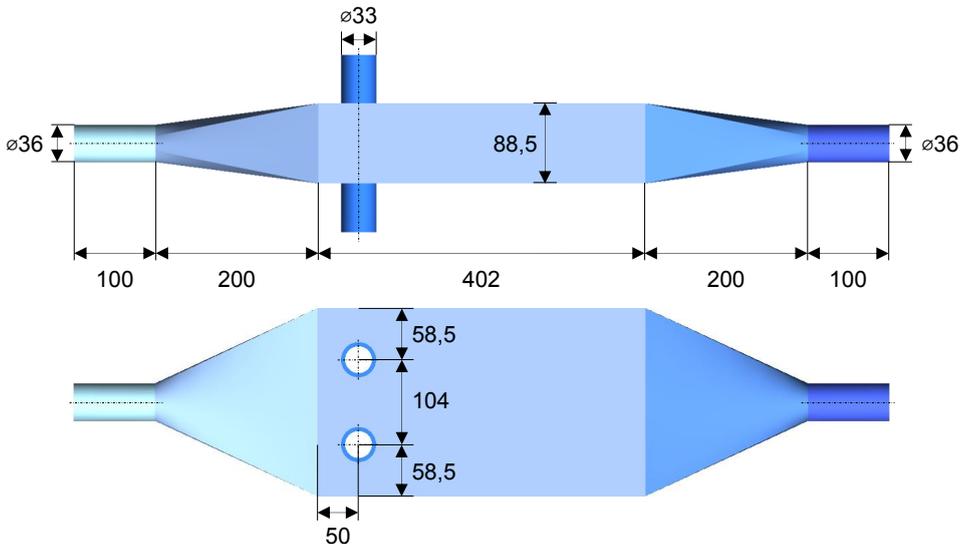


Abbildung 4-2: Vereinfachte Darstellung zur Visualisierung der Abmessungen des Prototyp-Moduls in Standardausführung; oben: Seitenansicht; unten: Draufsicht

Für Berechnungen in der vorliegenden Arbeit wird für alle Feed- und Permeatkanäle ein nicht-gewebter Spacer mit einem Filamentdurchmesser  $d_F = 0,7$  mm und einem Filamentabstand  $l_F = 3,55$  mm angenommen. Damit haben die Spacer gemäß Gl. 2-9 eine Porosität von ca. 78,3 %, sodass das freie Kanalvolumen 78,3 % des Gesamtkanalvolumens entspricht. Der hydraulische Durchmesser ist nach Gl. 2-11 von der Kanalhöhe abhängig. Somit haben Feed- und Permeatkanal im Prototyp-Modul aufgrund ihrer unterschiedlichen Höhe unterschiedliche hydraulische Durchmesser. Bei einer Kanalhöhe des Feedkanals von 1,0 mm beträgt der hydraulische Durchmesser 0,95 mm und bei einer Kanalhöhe des Permeatkanals von 1,5 mm beträgt er 1,2 mm.

#### 4.1.2 Druckverlustmodellierung in ANSYS® FLUENT®

Die Modellierung des Druckverlustes in den Spacer-gefüllten Kanälen bei den Strömungssimulationen in FLUENT® erfolgt über ein Ersatzmodell. Der Spacer wird in seiner Geometrie nicht abgebildet, sondern seine Druckverlustcharakteristik wird durch eine Druckverlustcharakteristik eines porösen Körpers ersetzt. Damit ist es möglich, die Feed- und Permeatkanäle des Membranmoduls bei der Vernetzung wie einen Leerkanal zu behandeln, der in FLUENT® die Eigenschaften eines porösen Körpers zugewiesen bekommt. Die Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers wird aus der Druckverlustcharakteristik des eingesetzten Spacers

nach Gl. 3-32 und Gl. 3-33 ermittelt. Hierzu wird die experimentell gewonnene Charakteristik für verschiedene physikalische Geschwindigkeiten ausgewertet und aus den gewonnenen Daten ein Regressionspolynom mit einem linearen und einem quadratischen Term generiert. Aus den Vorfaktoren der beiden Terme können die Permeabilität  $K$  und die Konstante  $C_2$  der Gl. 3-49 bestimmt werden. Diese Konstanten müssen für jeden Druck und jede Kanalhöhe einzeln berechnet werden, da sich mit dem Druck die Stoffwerte des strömenden Mediums ändern und sich mit der Kanalhöhe der hydraulische Durchmesser ändert. Als Maß für die Abweichung zwischen Regressionspolynom und Werten der Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers wird das sogenannte Bestimmtheitsmaß  $R^2$  verwendet, welches Werte zwischen 0 und 1 annehmen kann. Dabei bedeutet ein Bestimmtheitsmaß von 1 eine hundertprozentige Übereinstimmung zwischen regressionsanalytisch geschätzten Werten und den aus der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik ausgewerteten Werten für alle Geschwindigkeiten.

Die Druckverlustcharakteristik der Spacer gemäß Gl. 3-32 und Gl. 3-33 wird für physikalische Geschwindigkeiten von 0 bis  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ausgewertet. Beispielhaft sind die Druckverluste je Meter Kanallänge für eine Kanalhöhe von 1,5 mm und für Drücke von 0,1 bar, 0,15 bar, 1 bar, 1,3 bar, 2 bar und 4 bar in Abbildung 4-3 durch die Markierungen gekennzeichnet. Der Spacer hat – wie in Kapitel 4.1.1 beschrieben – einen Filamentabstand von  $l_F = 3,55 \text{ mm}$  und einen Filamentdurchmesser von  $d_F = 0,7 \text{ mm}$ , sodass sich gemäß Gl. 2-9 und Gl. 2-11 eine Porosität von 78,3 % und ein hydraulischer Durchmesser von 1,2 mm ergeben.

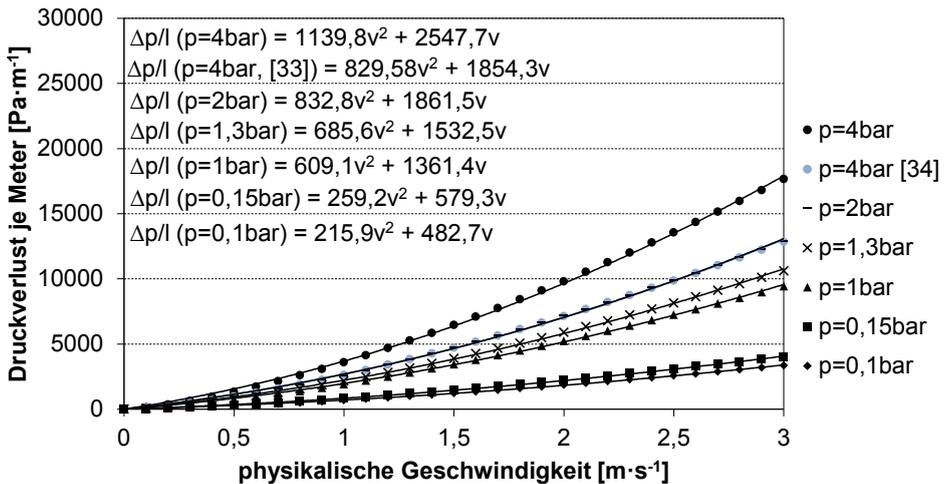


Abbildung 4-3: Druckverlustcharakteristik der Spacer-gefüllten Kanäle für eine Kanalhöhe von 1,5 mm; ausgewertet für verschiedene Drücke im Kanal; die Markierungen zeigen die Auswertung der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik eines Spacer nach [81]; Linien und Formeln zeigen das zugehörige Regressionspolynom zweiten Grades, aus denen die Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers gewonnen werden; grau dargestellt ist die Auswertung der Druckverlustcharakteristik gemäß [34]

Die Linien geben die zugehörigen Regressionspolynome zweiten Grades wieder. Die Formeln dieser Regressionspolynome sind ebenfalls in Abbildung 4-3 aufgelistet. Das Bestimmtheitsmaß ist für alle Regressionspolynome  $R^2 > 0,999$ , sodass die Übereinstimmung zwischen Werten der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik für Spacer-gefüllte Kanäle und Werten der Druckverlustcharakteristik poröser Körper nahezu perfekt ist. Werden die Gleichungen der Regressionspolynome gleich der Druckverlustgleichung eines porösen Körpers gemäß Gl. 3-49 gesetzt, können die unbekannt Parameter  $K$  und  $C_2$  dieser Gleichung bestimmt werden. Die analoge Auswertung der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik der Spacer-gefüllten Kanäle für eine Kanalhöhe von 1 mm führt zu den Regressionspolynomen, die im Anhang 8.9 in Abbildung 8-5 dargestellt sind.

Die Parameter  $K$  und  $C_2$  sind in Tabelle 4-1 für die verschiedenen Drücke und die beiden Kanalhöhen angegeben. Da in FLUENT® der Kehrwert der Permeabilität  $K$  vorgegeben wird, ist dieser ebenfalls in Tabelle 4-1 aufgeführt.

Tabelle 4-1: Permeabilität  $K$  und Parameter  $C_2$  für die Druckverlustcharakteristik poröser Körper zur Modellierung des Druckverlustes Spacer-gefüllter Kanäle in FLUENT® für verschiedene Drücke und Kanalhöhen von 1 mm und 1,5 mm

Druck [bar]	Kanalhöhe: 1 mm			Kanalhöhe: 1,5 mm		
	$K [m^2]$	$1/K [m^{-2}]$	$C_2 [m^{-1}]$	$K [m^2]$	$1/K [m^{-2}]$	$C_2 [m^{-1}]$
0,1	$1,955 \cdot 10^{-8}$	$5,114 \cdot 10^7$	8089	$2,795 \cdot 10^{-8}$	$3,578 \cdot 10^7$	5658
0,15	$1,629 \cdot 10^{-8}$	$6,138 \cdot 10^7$	6471	$2,329 \cdot 10^{-8}$	$4,294 \cdot 10^7$	4528
1	$6,938 \cdot 10^{-9}$	$1,441 \cdot 10^8$	2280	$9,918 \cdot 10^{-9}$	$1,008 \cdot 10^8$	1595
1,3	$6,166 \cdot 10^{-9}$	$1,622 \cdot 10^8$	1974	$8,814 \cdot 10^{-9}$	$1,135 \cdot 10^8$	1381
2	$5,08 \cdot 10^{-9}$	$1,969 \cdot 10^8$	1557	$7,261 \cdot 10^{-9}$	$1,377 \cdot 10^8$	1090
4	$3,72 \cdot 10^{-9}$	$2,689 \cdot 10^8$	1064	$5,316 \cdot 10^{-9}$	$1,881 \cdot 10^8$	744
4 [34]	-	-	-	$9,33 \cdot 10^{-9}$	$1,072 \cdot 10^8$	332

Zur Verifizierung der Druckverlustmodellierung über das Ersatzmodell wird in FLUENT® ein vereinfachtes Membranmodul aus [34] nachgebildet und mit gleichen Strömungsbedingungen und Stoffwerten simuliert. Der in [34] verwendete Spacer hat eine Porosität von 84 % und der Spacer-gefüllte Kanal einen hydraulischen Durchmesser von 1,49 mm. Um diese abweichenden Eigenschaften bei der Strömungssimulation zur Verifizierung zu berücksichtigen, wird in Abbildung 4-3 zusätzlich die Auswertung der Druckverlustcharakteristik mit der geänderten Spacergeometrie über die grauen Markierungen dargestellt. Die Parameter  $K$  und  $C_2$  der zugehörigen Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers sind in der letzten Zeile der Tabelle 4-1 aufgeführt. Das zur Verifizierung simulierte Membranmodul besteht aus vier Membrantaschen und fünf Feedkanälen. Jeder Feedkanal ist 0,6 m breit, 1,984 m lang und 1,5 mm hoch. Der Druck auf der Feedseite beträgt 4 bar und auf der Permeatseite 0,1 bar. Die Feedkanäle werden mit einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,84 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  durchströmt. Die Permeation durch die Membranen wird berücksichtigt, da diese aufgrund des abnehmenden Massenstroms die Strömungsgeschwindigkeit in den Feedkanälen über die Lauflänge verringert. Der simulierte Verlauf des Druckverlustes im obersten Spacer-gefüllten Kanal ist in Abbildung 4-4 visualisiert. Der gleiche Verlauf ergibt sich für die parallel verlaufenden Feedkanäle. Der simulierte Druckverlust beträgt ca. 3530 Pa. Dies deckt sich mit dem in [34] berechneten Druckverlust von 3510 Pa, sodass die Druckverlustmodellierung in FLUENT® mit dem Ersatzmodell verifiziert ist und für die Simulation des Prototyp-Moduls

verwendet werden kann. Die Modellierung der Permeation ist ebenso mit diesem Ergebnis verifiziert. Der Abtrenngrad liegt sowohl bei der Simulation als auch in [34] bei ca. 70 %.

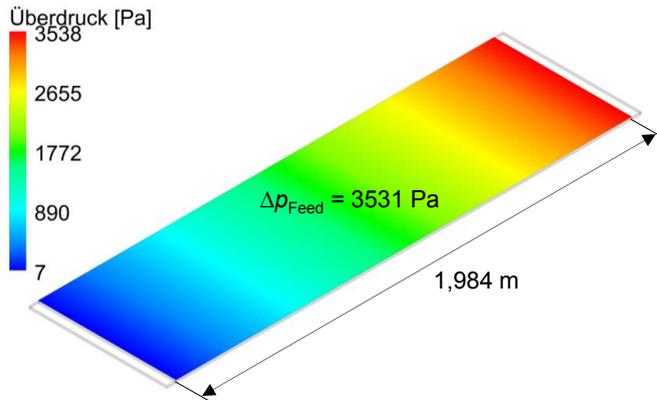


Abbildung 4-4: In FLUENT® simulierter Druckverlust in einem 1,984 m langen Spacer-gefüllten Kanal; Kanalhöhe: 1,5 mm; Druckangabe entspricht Überdruck über dem Betriebsdruck von  $4 \cdot 10^5 \text{ Pa}$ ; Eintrittsgeschwindigkeit:  $0,84 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

#### Fazit

Zur Berücksichtigung des Druckverlustes durch die Spacer in den Feed- und Permeatkanälen wird in den Strömungssimulationen ein Ersatzmodell verwendet. Die Spacer werden im Strömungsraum nicht geometrisch abgebildet, sondern durch einen porösen Körper ersetzt, welcher eine nahezu gleiche Druckverlustcharakteristik hat wie der Spacer-gefüllte Kanal. Dadurch wird eine realistischere Abtrennperformance simuliert und berücksichtigt, dass die Spacer ein Strömungshindernis darstellen. Gleichzeitig ändert sich der Rechenaufwand nur durch die Berechnung der zusätzlichen Gleichungen für die Modellierung des porösen Körpers, da der poröse Körper wie ein Leerkanal vernetzt werden kann. Eine Verifizierung anhand einer Vergleichssimulation mit Literaturwerten bestätigt die Anwendbarkeit des Modells. Dieses Ersatzmodell kann prinzipiell zur Simulation aller Membranmodule mit Spacer-gefüllten Kanälen angewandt werden.

#### 4.1.3 Simulation des Prototyp-Moduls in Standardausführung

Die Modellierungsansätze für die Permeation und die Berücksichtigung des Strömungswiderstandes der Spacer-gefüllten Kanäle werden zur Simulation des Prototyp-Moduls angewandt. Dabei werden noch keine Optimierungsmaßnahmen berücksichtigt, sodass der Strömungsverlauf des Prototyp-Moduls in Standardausführung, wie es in Kapitel 4.1.1 beschrieben wird, ermittelt wird. Für die Simulation wird ein Retentatdruck von 4 bar eingestellt. Zusammen mit der Wahl des Permeatdruckes von 0,1 bar und einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit<sup>9</sup> in den Membranstapel von  $0,4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  wird gewährleistet, dass trotz der Größe des Membranmoduls ein hoher  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad erzielt wird. Dies ist notwendig, da sich die nicht-ideale Überströmung der Membrantaschen auf das Trennergebnis auswirkt, wenn in einzelnen Feedkanälen der Feedstrom merklich an  $\text{CO}_2$  verarmt. Gerade dies soll mit den

<sup>9</sup> Diese entspricht aufgrund der in Kapitel 4.3 beschriebenen Bypass-Strömungen nicht der tatsächlichen Eintrittsgeschwindigkeit.

durchgeführten Simulationen gezeigt und durch Optimierungsmaßnahmen verbessert werden. Als Feed wird in allen CFD-Simulationen ein vereinfachtes Rauchgasgemisch angenommen, das zu 21,64 Gew.-% aus  $\text{CO}_2$ , zu 78,02 Gew.-% aus  $\text{N}_2$  und zu 0,34 Gew.-% aus  $\text{H}_2\text{O}$  besteht. Dies reduziert die Anzahl der Ausführungen der benutzerdefinierten Funktion für die Permeation, da nur von drei Komponenten die Permeationsrate in jeder Zelle berechnet werden muss. Die Rauchgaskomponenten Sauerstoff und Argon werden aufgrund des ähnlichen Permeationsverhaltens wie Stickstoff vernachlässigt und nur in der Auslegung des Membranmoduls im Kraftwerksmaßstab im Kapitel 5 berücksichtigt.

Als Voraussetzung dafür, dass das Strömungsverhalten am Anfang der Querschnittserweiterung möglichst realitätsnah abgebildet werden kann, muss die Strömung im Zulaufrohr voll ausgebildet sein. Dies bedeutet, dass sich das Geschwindigkeitsprofil einer turbulenten Rohrströmung ausgebildet hat, welches sich entlang der Rohrachse nicht mehr ändert. Da in ANSYS® FLUENT® standardmäßig nur eine konstante Geschwindigkeit am Eintritt vorgegeben werden kann, muss ein langes Zulaufrohr gewählt werden, damit die Strömung am Anfang der Querschnittserweiterung voll ausgebildet ist. Die Änderung des Geschwindigkeitsprofils entlang der Rohrachse ist in Abbildung 4-5 für eine durchschnittliche Geschwindigkeit von ca.  $2,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  dargestellt. Der Durchmesser des simulierten Rohres entspricht dem Durchmesser des Zulaufrohres des Membranmoduls von 36 mm. Am Eintritt – also bei 0 m – ergibt sich aufgrund der Vorgabe eines über die Fläche konstanten Wertes ein Kolbenprofil. Das Profil bei einer Lauflänge von 3 m wird als nicht mehr veränderlich angesehen und gibt das Geschwindigkeitsprofil der voll ausgebildeten turbulenten Rohrströmung wieder. Zwischen diesen beiden Positionen nähert sich das Kolbenprofil dem Profil der ausgebildeten Strömung an. Bei 0,5 m weicht das Geschwindigkeitsprofil vom Endzustand ab, wohingegen es für 1 m hinter dem Eintritt nahezu deckungsgleich mit dem Profil bei 3 m ist. Somit ist die Einlaufstrecke zur Ausbildung des Geschwindigkeitsprofils mindestens 1 m lang.

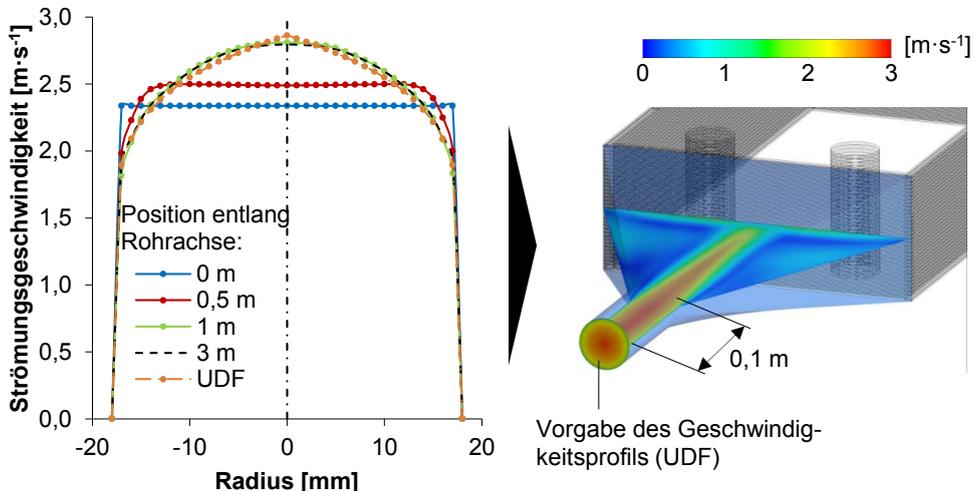


Abbildung 4-5: Geschwindigkeitsprofile einer turbulenten Rohrströmung an verschiedenen Positionen entlang der Rohrachse mit einer beispielhaften durchschnittlichen Geschwindigkeit von  $2,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  (links) und Vorgabe eines Geschwindigkeitsprofils am Eintritt des Zulaufrohres durch eine benutzerdefinierte Funktion (UDF) und ausgebildete Rohrströmung im Zulaufrohr (rechts)

Damit nicht die Strömung in einem 1 m langen Rohr vor dem eigentlichen Membranmodul simuliert werden muss, wird über eine benutzerdefinierte Funktion (UDF) ein Geschwindigkeitsprofil am Eintritt des Zulaufrohres vorgegeben. Die mathematische Beschreibung des Geschwindigkeitsprofils dieser UDF findet sich im Anhang 8.9. Das Profil der UDF ist in Abbildung 4-5 sowohl im Diagramm (links) eingetragen als auch im Membranmodul (rechts) visualisiert. Es weicht ca. 1,2 % von dem Profil der ausgebildeten Rohrströmung ab. Eine Restlänge des Zulaufrohres von 0,1 m wird beibehalten, um diese Abweichung weiter zu mindern. Mit dem Profil der UDF wird eine bestimmte Ziel-Geschwindigkeit am Eintritt in die Feedkanäle eingestellt. Wird beispielsweise eine Eintrittsgeschwindigkeit in den Feedkanälen von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  angestrebt, wird die durchschnittliche Geschwindigkeit am Eintritt des Zulaufrohres von  $2,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  vorgegeben. Bei dieser Eintrittsgeschwindigkeit sind die triebkraftmindernden Effekte – Druckverlust und Konzentrationspolarisation – gering, sodass sie als Geschwindigkeit in Membranmodulen einzustellen ist, wie in Kapitel 5 gezeigt wird.

Für diese Strömungsgeschwindigkeit ist der Druckverlauf im Membranmodul zwischen Eintritt des Feedstroms und Austritt des Retentatstroms in Abbildung 4-6 dargestellt. Für die Lösung der Bilanzgleichungen wird im Strömungslöser der Druck am Austritt vorgegeben. Dies ist der Retentatdruck des Membranmoduls, der als Betriebsdruck ausgewählt wird. Die Angaben des Druckes im übrigen Fluidraum erfolgen als Überdruck bezüglich des Betriebsdruckes. Dabei wird eine xz-Ebene 1,25 mm oberhalb der Rotationsachse des Zulaufrohres in y-Richtung gewählt, damit der Druckverlauf im Membranstapel innerhalb eines Feedkanals und nicht auf der Höhe einer Membrantasche ausgewertet wird.

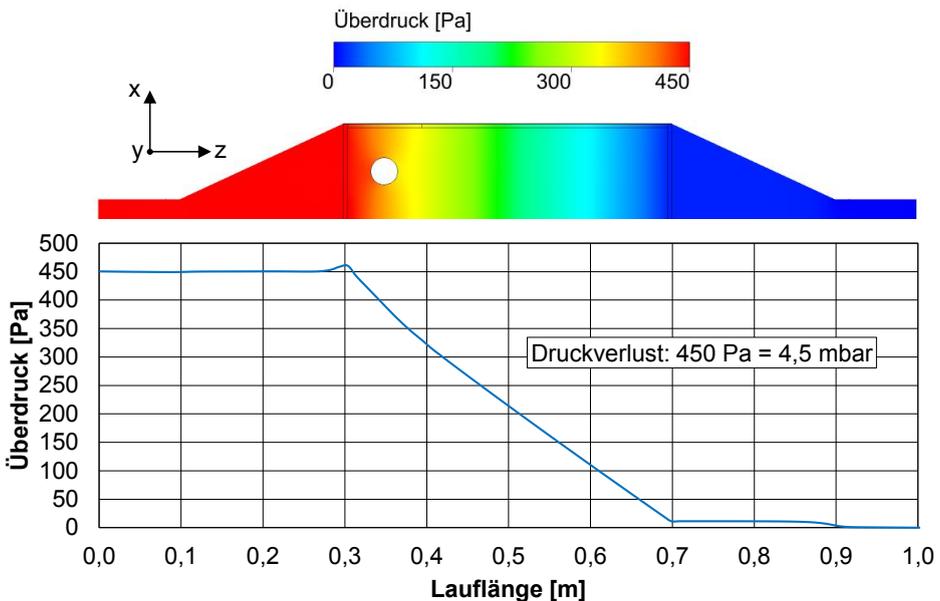


Abbildung 4-6: Druckverlauf auf der Feedseite des Membranmoduls inklusive Zulauf- und Ablaufbereich bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in den Membranstapel von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Überdruck bezogen auf einem Retentatdruck von ca. 4 bar (400.000 Pa)

Der Druckverlust in der Zulaufleitung ist bei einer Strömungsgeschwindigkeit von  $2,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Rohr vernachlässigbar niedrig. Auch über die Länge der Querschnittserweiterung ist die Änderung des Druckes bei dieser niedrigen Strömungsgeschwindigkeit unmerklich. Die Druckrückgewinnung aufgrund der Geschwindigkeitsänderung kompensiert ungefähr die durch die Verwirbelungen auftretenden Druckverluste. Im ersten Teil der Querschnittserweiterung steigt der Druck minimal an und im zweiten Teil überwiegt der Druckverlust durch die Verwirbelung. Bei höheren Geschwindigkeiten sind diese beiden Bereiche deutlicher ausgeprägt, wie im Anhang 8.9 in Abbildung 8-6 dargestellt ist. Bei einer Lauflänge von  $0,3 \text{ m}$  trifft die Strömung auf die Spacer als Hindernis in dem Feedkanal, sodass sich eine Art Staudruck bildet. Innerhalb des Feedkanals fällt der Druck für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  gemäß der Druckverlustcharakteristik des Spacers von  $460 \text{ Pa}$  auf  $10 \text{ Pa}$  ab. Der restliche Druckverlust von  $10 \text{ Pa}$  ist hauptsächlich auf die Einschnürung der Strömung am Ende der Querschnittsverjüngung zurückzuführen. Um diese  $10 \text{ Pa}$  erhöht sich der Druck durch den Aufprall der Strömung auf den Spacer. Absolut gesehen entspricht der Druckverlust von  $4,5 \text{ mbar}$  im Membranstapel daher dem gesamten Druckabfall zwischen Eintritt des Zulaufrohres und Austritt des Ablaufrohres. Damit entfällt nahezu der gesamte Druckverlust auf den Bereich des Membranstapels.

Der Abtrenngrad des in ANSYS® FLUENT® untersuchten Membranmoduls liegt für den vorliegenden Fall bei  $66 \%$ . Im Vergleich dazu ergibt sich bei vollständiger Ausnutzung der Membran – also idealer Durchströmung aller Feedkanäle – ein Abtrenngrad von  $81,3 \%$ . Die Durchströmung wird als ideal bezeichnet, wenn  $100 \%$  des Feedstroms über die aktive Membranfläche strömt und jeder Feedkanal mit dem gleichen Massenstrom durchströmt wird.

Als wesentliche Defizite in der Anströmung des Membranstapels werden der so genannte Bypass-Strom und die inhomogene Geschwindigkeitsverteilung am Eintritt in den Membranstapel identifiziert. In Abbildung 4-7 (oben) ist der Strömungsverlauf der Feedströmung im Prototyp-Membranmodul dargestellt. Der Freistrahл trifft am Eintritt in die Feedkanäle auf den Membranstapel und wird dadurch zu allen Seiten abgelenkt. Ein Teil des Feedstroms passiert das Membranmodul durch den Rand des Membranstapels. Dort überströmt dieser Teil jedoch nicht mehr die aktive Membranfläche. Diese Seitenströmung wird im Folgenden als Bypass-Strom bezeichnet. Die Konsequenzen des Bypass-Stroms hinsichtlich der Abtrennperformance werden in Kapitel 4.3 näher untersucht. Zudem ist in Abbildung 4-7 (unten) die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung am Eintritt in den Membranstapel dargestellt. Durch diese Darstellung wird bestätigt, dass ein Teil der Feedströmung durch den seitlichen Bypass strömt. Die Strömungsgeschwindigkeit im Bypass ist höher als im Durchschnitt innerhalb der Feedkanäle. Ein weiteres Merkmal der Geschwindigkeitsverteilung ist, dass dort, wo der Freistrahл auf die Membrantaschen trifft, auch die Geschwindigkeit in z-Richtung – also in Richtung Feedkanäle – im Querschnitt A-A am höchsten ist. Zu den Seiten hin ist die Geschwindigkeit in x-Richtung dominierend, da die Strömung vor dem Membranstapel seitlich umgelenkt wird. Doch auch das umgelenkte Gas tritt in den Membranstapel ein, wie die in Abbildung 4-7 (oben) dargestellten Stromlinien zeigen. Daher ist kurz hinter dem Eintritt in den Membranstapel im Querschnitt B-B die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung wieder homogener. In Kapitel 4.2 wird untersucht, ob konstruktive Maßnahmen die Strömungsverteilung schon vor Eintritt in den Membranstapel homogenisieren und ob dies zu einer besseren Abtrennperformance führt.

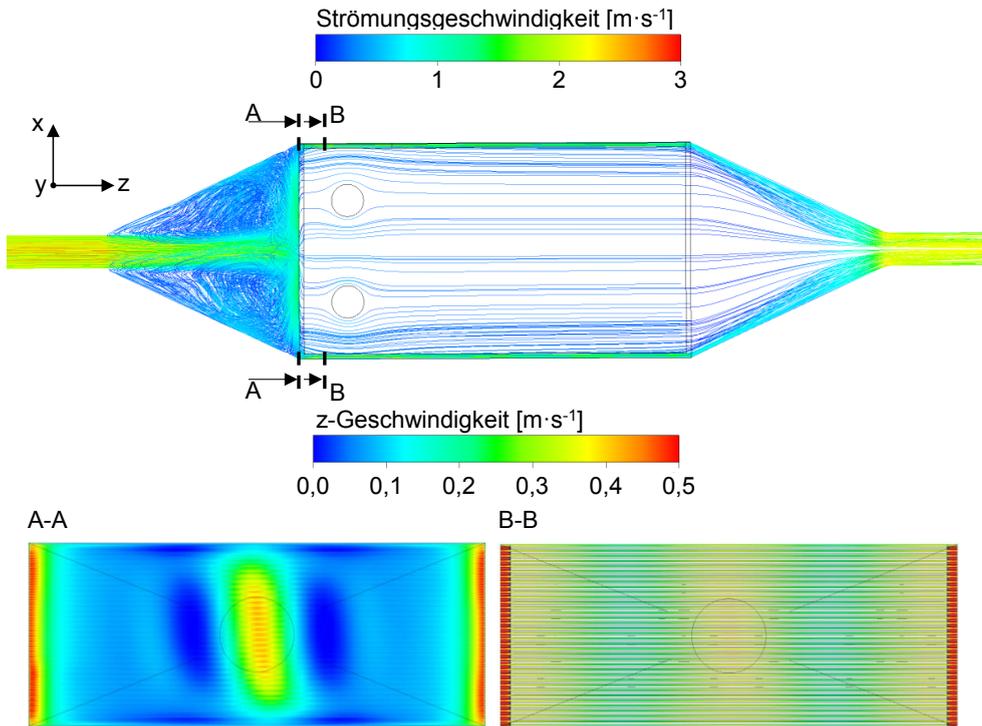


Abbildung 4-7: Strömungsverlauf des Feedstroms im Membranmodul (oben) und Verteilung der Geschwindigkeit in z-Richtung im Querschnitt A-A und B-B (unten)

## 4.2 Anströmung des Membranstapels

Die Anströmung des Membranstapels beeinflusst die Homogenität der Durchströmung der einzelnen Feedkanäle. Eine inhomogene Verteilung des Feedmassenstroms auf die Feedkanäle bewirkt eine unterschiedliche Abreicherung der Komponenten in den einzelnen Kanälen. Abbildung 4-8 verdeutlicht diesen Effekt.

Für eine beispielhafte Rechnung wird vereinfacht angenommen, dass die Feedkanäle der oberen Hälfte des Membranmoduls mit einem anderen Massenstrom durchströmt werden als die Feedkanäle der unteren Modulhälfte. Der Anteil des Gesamtmassenstroms, der durch die obere Hälfte strömt, wird zwischen 50 % und 90 % variiert. Analoge Ergebnisse ergeben sich, wenn der Anteil des Gesamtmassenstroms, der durch die untere Modulhälfte strömt, zwischen 50 % und 90 % variiert wird. Dabei bedeutet ein Anteil von 50 %, dass beide Modulhälften homogen durchströmt werden. In diesem Fall ist der Gesamtabtrenngrad des Membranmoduls maximal. Je inhomogener die Verteilung des Massenstroms ist, desto geringer wird der Gesamtabtrenngrad. Trennt das Membranmodul bei homogener Durchströmung insgesamt ca. 68 % des CO<sub>2</sub> ab, liegt der Gesamtabtrenngrad bei einem Anteil des Gesamtmassenstroms in der oberen Membranhälfte von 90 % bei nur noch 51 % - also ca. 17 %-Punkte niedriger. Dies ist darauf zurückzuführen, dass bei kleinen Massenströmen je Kanal bei einer festgelegten Kanallänge zwar ein großer Anteil an CO<sub>2</sub> dieses Stroms durch die Membran permeiert, aber bezogen auf den gesamten Massenstrom wenig abgetrennt

wird. Dies verdeutlichen die Verläufe der Abtrenngrade der unteren Modulhälfte. Je geringer der Massenstrom durch die untere Modulhälfte ist, desto größer wird der Abtrenngrad bezogen auf einen Kanal – im Folgenden Teilabtrenngrad genannt – der unteren Modulhälfte. Beispielsweise liegt der Teilabtrenngrad der unteren Modulhälfte gemäß Abbildung 4-8 bei nahezu 100 %, falls 10 % des Massenstroms durch die untere Modulhälfte strömt. Der Abtrenngrad der unteren Modulhälfte bezogen auf den Gesamtmassenstrom liegt hingegen bei lediglich 10 %. Umgekehrt sinkt der Teilabtrenngrad der oberen Modulhälfte bei steigendem Anteil des Gesamtmassenstroms durch diese Modulhälfte von 68 % auf 46 % und der Abtrenngrad bezogen auf den Gesamtmassenstrom steigt leicht von 34 % auf 42 %.

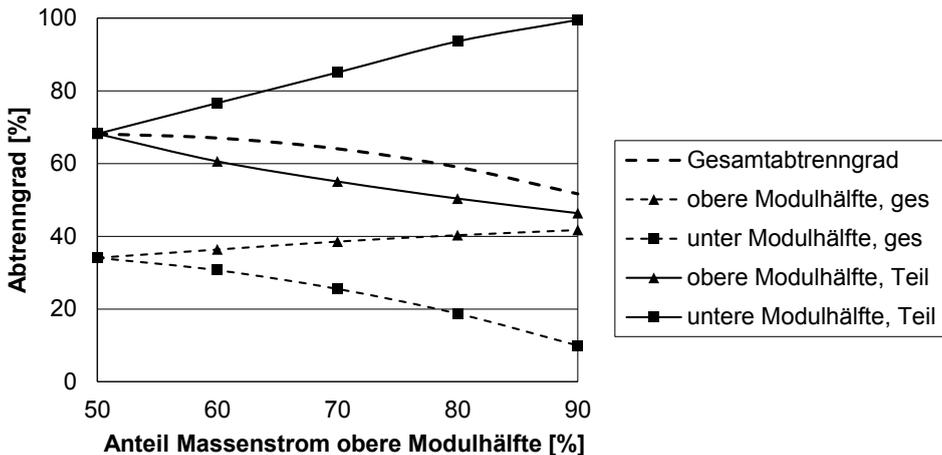


Abbildung 4-8: Abtrenngrad bei inhomogener Verteilung des Massenstroms auf die Feedkanäle des Membranstapels; gesamt: Abtrenngrad bezogen auf den gesamten Feedstrom; Teil: Abtrenngrad bezogen auf den Feedstrom in der Modulhälfte

Die Geometrie der Querschnittserweiterung und die Anströmgeschwindigkeit haben einen Einfluss auf die Anströmung des Membranstapels und damit auf die Verteilung des Massenstroms auf die Feedkanäle. Daher wird im Folgenden untersucht, wie sich die Strömung in der Querschnittserweiterung verteilt und wie die Feedkanäle angeströmt werden.

#### 4.2.1 Strömungsverteilung im divergenten Kanal ohne und mit Gegendruck

Schließt an der Querschnittserweiterung ein freier Kanal ohne Gegendruck an, ergeben sich die Strömungszustände in dem divergenten Kanal gemäß Abbildung 3-7 aus Kapitel 3.4 in Abhängigkeit der Geometrie der Querschnittserweiterung. Die Querschnittserweiterung des Prototyp-Moduls hat einen Öffnungswinkel von ca.  $50^\circ$  und ist 0,2 m lang. Der Durchmesser des Zulaufrohres liegt bei 0,036 m, sodass sich ein Verhältnis von Länge des divergenten Kanals und Radius des Querschnitts vor der Erweiterung von ungefähr 11 ergibt. Wird diese Geometrie gewählt und hinter der Querschnittserweiterung statt der Membrantaschen ein leerer Kanal angenommen, sollte sich die Strömung nach Abbildung 3-7 an der Kante am Anfang der Querschnittserweiterung ablösen. Die in Abbildung 4-9 (oben) dargestellten Ergebnisse der entsprechenden Strömungssimulation zeigen diese Strömungsablösung. Die

Hauptströmung folgt gemäß dem in Abbildung 3-6 dargestellten Strömungszustand c) einer Wand. Hierbei lenken kleinste Unregelmäßigkeiten durch die Turbulenz der Strömung die Hauptströmung zu einer Seite leicht ab und das Ablösegebiet verdrängt die Hauptströmung zu einer Wand. Im Querschnitt A-A – also am Ende der Querschnittserweiterung – wird dadurch die eine Hälfte des anschließenden Kanals mit einer sehr geringen Geschwindigkeit durchströmt und die Hauptströmung konzentriert sich auf die andere Hälfte.

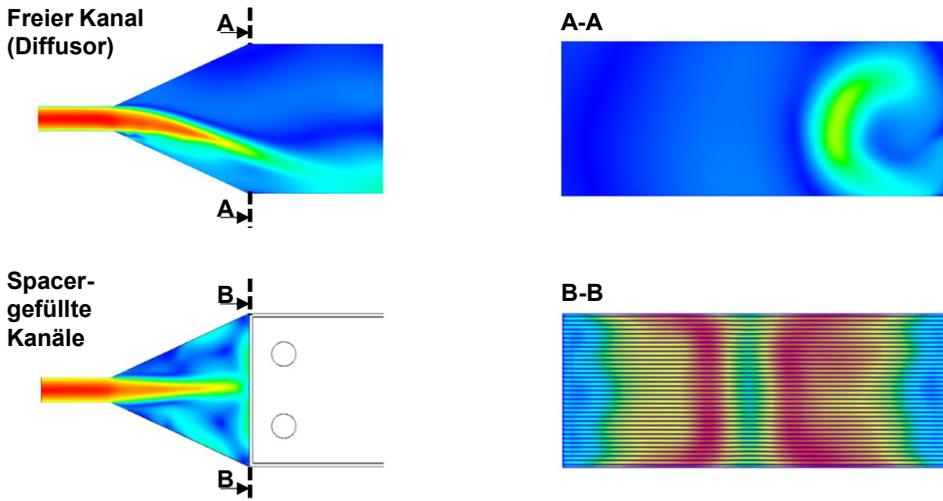


Abbildung 4-9: Qualitative Strömungsverteilung in der Querschnittserweiterung mit nachgeschaltetem freien Kanal (oben, in Anlehnung [84]) und mit nachgeschaltetem Membranstapel und Spacer-gefüllten Feedkanälen (unten)

Werden die Membrantaschen alternierend mit den Spacer-gefüllten Feedkanälen hinter der Querschnittserweiterung als Membranstapel angebracht, ergibt sich eine ganz andere Verteilung am Ende der Querschnittserweiterung. Diese Verteilung ist in Abbildung 4-9 (unten) dargestellt. Die Strömung löst hier zwar ebenfalls am Anfang der Querschnittserweiterung geometrisch induziert ab, allerdings ergibt sich eine Freistrahlschichtung mit Ablösegebieten auf beiden Seiten gemäß dem in Abbildung 3-6 dargestellten Strömungszustand d). Dies liegt daran, dass der Membranstapel und der als poröser Körper angenäherte Spacer in den Feedkanälen Strömungshindernisse darstellen und sich somit ein Gegendruck für die Strömung bildet. Der Freistrahlschicht trifft auf den Membranstapel und wird teilweise umgelenkt. Ein Teil der Freistrahlschicht tritt jedoch direkt in die Feedkanäle, sodass dort die Geschwindigkeit in Richtung Hauptströmung zunächst höher ist als rechts und links neben dem Aufprallgebiet des Freistrahls. Dieser Teil verteilt sich 10 mm hinter dem Eintritt in den Membranstapel nahezu gleichmäßig. Der abgelenkte Teil des Feedstroms verteilt sich über die Modulbreite und strömt ebenfalls in die Feedkanäle. Dies homogenisiert die Feedströmung kurz hinter dem Eintritt in den Membranstapel zusätzlich, wie in Abbildung 4-7 gezeigt wird.

Ein Effekt, der zur Verschlechterung der Abtrennleistung bei hohen Abtrenngraden führt, ist die inhomogene Verteilung des Feedstroms auf die einzelnen Feedkanäle. Die Verteilung des Feedstroms im Prototyp-Modul in Standardausführung ist in Abbildung 4-10 dargestellt. Es wird zwischen Spacer-gefülltem und freiem Feedkanal unterschieden.

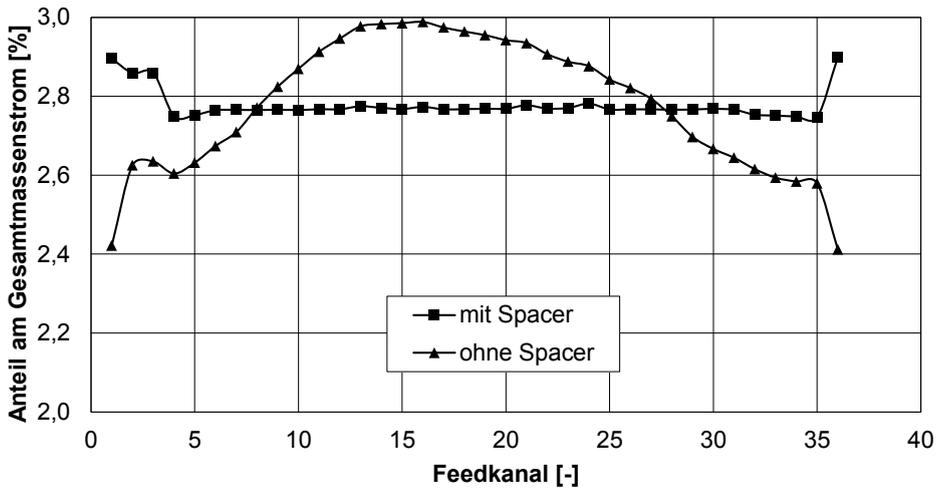


Abbildung 4-10: Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom für den Fall Spacer-gefüllter Feedkanäle und für den Fall freier Feedkanäle

Ist der Feedkanal nicht mit einem Spacer beziehungsweise – in den Simulationen – mit einem porösen Körper gefüllt, ist der Gegendruck nicht groß genug und die Strömung verteilt sich nicht homogen auf die 36 Feedkanäle. In den jeweils obersten und untersten Feedkanälen beträgt der Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom ca. 2,4 % bis 2,6 %. Diese Kanäle sind am weitesten von dem Aufprallgebiet des Freistrahls entfernt. Die mittleren Kanäle werden mit einem höheren Massenstrom durchströmt, da dort der Freistrah teilweise ungehindert in die Kanäle strömt. In diesen Feedkanälen beträgt der Anteil am Gesamtmassenstrom ca. 3 %. Ohne Feedspacer liegen die Membrantaschen jedoch ohne Abstand direkt aufeinander. Daher ist der Bau des Taschenmoduls ohne Feedspacer nicht möglich, sodass in den folgenden Simulationen der Feedspacer stets berücksichtigt wird.

Mit Feedspacer ist der Gegendruck so groß, dass die Strömungsumlenkung eine homogenere Verteilung auf die Feedkanäle bewirkt. In den mittleren Feedkanälen liegt der Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom konstant bei ca. 2,77 %. Der Massenstrom in den äußeren Kanälen ist sogar höher als in den mittleren Kanälen. Hier steigt der Anteil am Gesamtmassenstrom auf 2,9 % an. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der nach oben und unten abgelenkte Freistrah auf die obere beziehungsweise untere Gehäusewand trifft, dort erneut abgelenkt wird und somit in die äußeren Feedkanäle geleitet wird. Somit sorgt die Anwesenheit der Spacer für die Verteilung der Feedströmung.

#### 4.2.2 Variation der Anströmgeschwindigkeit und des Feeddruckes

Die in Kapitel 4.2.1 beschriebenen Strömungszustände gelten für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und einem Feeddruck von 4 bar. Diese Parameter gewährleisten eine hohe Abreicherung, sodass Auswirkungen der unvollkommenen Anströmung auf den Abtrenngrad deutlich werden. In der ersten Trennstufe des in Kapitel 2.5.3 vorgestellten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses liegt der Feeddruck jedoch bei ca. 1 bar. In der zweiten Trennstufe beträgt der Feeddruck 4 bar, allerdings ist gegebenenfalls die Eintrittsgeschwindigkeit höher

als  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ob sich durch den geringeren Feeddruck oder die höhere Eintrittsgeschwindigkeit die Anströmung des Membranstapels ändert, wird im Folgenden untersucht.

Die qualitative Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung ist für den Standardfall – also einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und eines Feeddrucks von 4 bar – und für zwei weitere Fälle in Abbildung 4-11 dargestellt. Ausgehend vom Standardfall wird zum einen der Feeddruck auf 1 bar verringert und zum anderen die Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit auf  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  erhöht. In der Abbildung der Strömungsverteilung in den Feedkanälen 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels ist jeweils die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung dargestellt.

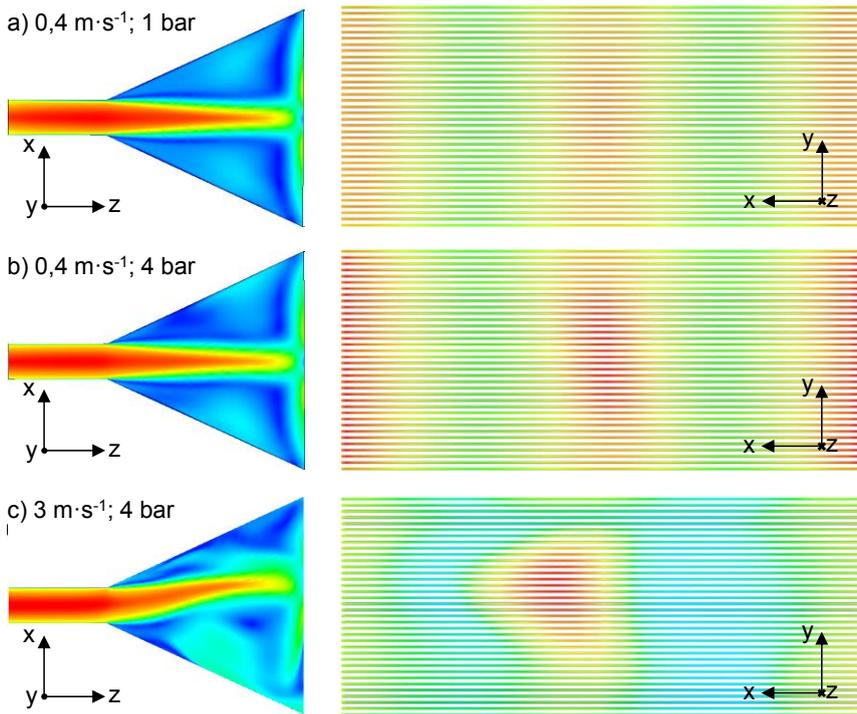


Abbildung 4-11: Qualitative Strömungsverteilung in der Querschnittserweiterung sowie in den Feedkanälen 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels für verschiedene Kombinationen aus Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit und Feeddruck  
 a) Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit:  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , Feeddruck: 1 bar; b) Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit:  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , Feeddruck: 4 bar; c) Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit:  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , Feeddruck: 4 bar

Eine Änderung des Feeddruckes hat zumindest in dem Druckbereich, in dem die Membranmodule betrieben werden, kaum Auswirkungen auf die Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung. Auch bei einem Feeddruck von 1 bar, welcher dem Feeddruck der ersten Trennstufe des in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses entspricht, löst die Strömung am Anfang der Querschnittserweiterung ab. Der Freistrahл trifft, wie in Abbildung 4-11 a) dargestellt, mittig auf den Membranstapel. Die Verteilung innerhalb

eines Feedkanals 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels ist bei einem Feeddruck von 1 bar insgesamt gleichmäßiger als die Verteilung bei einem Feeddruck von 4 bar, die in Abbildung 4-11 b) dargestellt ist. Dies liegt an der höheren Dichte bei einem Feeddruck von 4 bar, welche die kinetische Energie der Strömung steigert. Hierdurch verteilt sich die Strömung erst über eine längere Distanz gleichmäßig innerhalb des Feedkanals, wenn der Feeddruck höher ist.

Wird die Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  auf  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  erhöht, ergibt sich die Strömungsverteilung gemäß Abbildung 4-11 c). Der Freistrahл trifft nicht mehr mittig auf den Membranstapel, sondern wird leicht zur Seite abgelenkt. Transiente CFD-Simulationen ergeben, dass die Strömung instationär ist und der Freistrahл leicht zu beiden Seiten abgelenkt wird, wobei der Freistrahл im zeitlichen Mittel mittig auf den Membranstapel trifft. Dieses Verhalten der abgelösten Strömung tritt nur bei der hohen Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  auf. Auch hier bewirkt die erhöhte kinetische Energie, dass auch nach dem Aufprall des Freistrahls auf den Membranstapel ein größerer Teil des Freistrahls ungehindert in die mittleren Feedkanäle strömt. Dagegen strömt in dem Bereich neben dem Aufprallgebiet des Freistrahls der Feedstrom mit einer geringeren Geschwindigkeit in z-Richtung durch die Kanäle. Die Geschwindigkeitsverteilung innerhalb der Kanäle ist somit kurz hinter dem Anfang des Membranstapels bei erhöhter Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit noch relativ inhomogen.

Die Unterschiede in der Strömungsverteilung innerhalb eines Kanals 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels haben jedoch kaum Auswirkungen auf die Verteilung des Gesamtmassenstroms auf die Feedkanäle. In den Kanälen, die bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  direkt vom Freistrahл angeströmt werden, wird der Bereich neben dem Aufprallgebiet weniger durchströmt. Damit strömt im Mittel ungefähr so viel durch diese Kanäle wie durch die übrigen Kanäle. In Abbildung 4-12 wird der Anteil des Massenstroms in einem Feedkanal am Gesamtmassenstrom für die drei Fälle dargestellt.

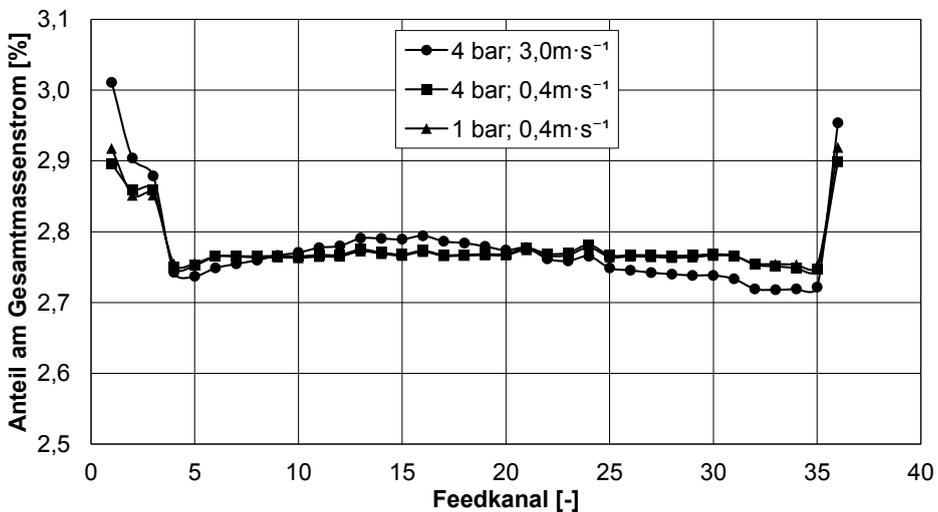


Abbildung 4-12: Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom für verschiedene Kombinationen aus Feeddruck und Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit

Unabhängig von der Eintrittsgeschwindigkeit und vom Feeddruck ist der Anteil am Gesamt-massenstrom in den äußeren Feedkanälen am höchsten. Dies liegt, wie Kapitel 4.2.1 beschrieben, an der Umlenkung der Strömung durch die obere und untere Gehäusewand in diese Feedkanäle. Ansonsten ist die Verteilung des Gesamt-massenstroms auf die Feedkanäle sehr homogen. Bei erhöhter Strömungsgeschwindigkeit ist der Anteil am Gesamt-massenstrom in den Feedkanälen 10 bis 20 im Vergleich zu den Fällen mit einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  leicht erhöht. Dies sind die Kanäle, die direkt vom Freistrah angeströmt werden. Durch die Feedkanäle 25 bis 35 strömt als Ausgleich dafür weniger.

#### 4.2.3 Einsatz von Leitblechen zur homogenen Anströmung des Membranstapels

Die am Anfang der Querschnittserweiterung ablösende Freistrahströmung wird durch den Gegendruck der Spacer-gefüllten Kanäle und der Membrantaschen so umgelenkt, dass sich der Massenstrom nahezu homogen auf die Feedkanäle verteilt. Allerdings ist innerhalb eines Feedkanals die Verteilung nicht von Anfang an homogen. Daher wird im Folgenden der Einsatz von Leitblechen untersucht, durch die sich die Strömung schon in der Querschnittserweiterung gleichmäßiger verteilen soll. Es wird auch untersucht, wie sich die Strömung mit Einsatz der Leitbleche bei einer erhöhten Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  verteilt.

Es werden die drei in Abbildung 4-13 dargestellten Konfigurationen von Leitblechen untersucht. Dabei haben alle Leitbleche eine Wandstärke von 1 mm und ragen jeweils 20 mm in die Querschnittserweiterung. Die erste Konfiguration, die in Abbildung 4-13 a) dargestellt ist, besteht aus drei Leitblechen, von denen eins in der Mitte angeordnet ist. Die äußeren beiden Leitbleche sind um einen Winkel von  $25^\circ$  zum mittleren Leitblech gedreht und haben einen Abstand von 16 mm zueinander. In der zweiten Konfiguration, die in Abbildung 4-13 b) dargestellt ist, sind die äußeren beiden Leitbleche mit einem Radius von 35 mm gekrümmt. Der Abstand zwischen den äußeren Leitblechen beträgt wiederum 16 mm und das dritte Leitblech ist in der Symmetrieachse angeordnet. Die dritte in Abbildung 4-13 c) dargestellte Konfiguration entspricht der zweiten Konfiguration vermindert um das mittlere Leitblech, sodass diese Konfiguration nur aus zwei gekrümmten Leitblechen besteht.

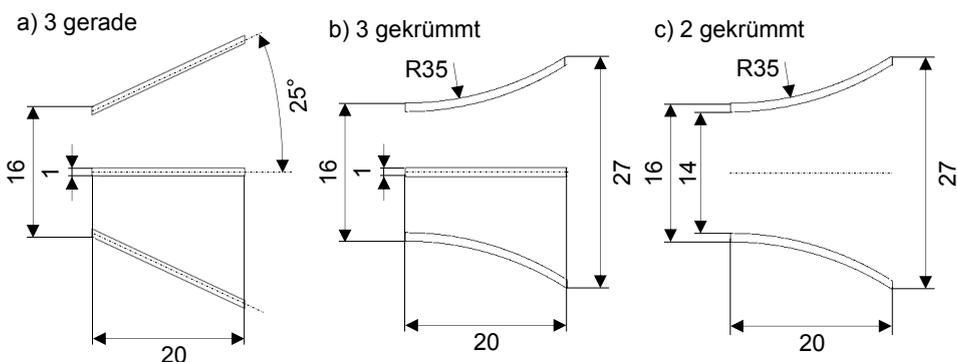


Abbildung 4-13: Abmessungen der drei Leitblechkonfigurationen: a) drei gerade Leitbleche; b) drei Leitbleche, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind; c) zwei gekrümmte Leitbleche; alle Angaben in mm

In Abbildung 4-14 wird die Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung im Prototyp-Modul ohne und mit Einsatz von Leitblechen für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  dargestellt. Werden keine Leitbleche am Anfang der Querschnittserweiterung eingebaut, löst die Strömung direkt hinter dem Zulaufrohr geometrisch induziert ab. Bei der Geometrie des Prototyp-Moduls ergibt sich eine asymmetrische Strömungsverteilung hauptsächlich in x-Richtung, da in diese Richtung der Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung bei ca.  $50^\circ$  liegt. Dagegen beträgt der Öffnungswinkel in y-Richtung  $15^\circ$ , sodass sich der Freistrah in diese Richtung ausweitet, wie in Abbildung 4-14 a) dargestellt ist. Werden drei gerade Leitbleche am Anfang der Querschnittserweiterung eingesetzt, verteilt sich die Strömung homogener über den gesamten Querschnitt am Eintritt in den Membranstapel, wie in Abbildung 4-14 b) dargestellt ist. Allerdings sind die äußeren beiden Leitbleche schräg zur Hauptströmungsrichtung angeordnet, sodass die Strömung der Geometrie nicht mehr folgen kann und an der Vorderkante dieser Leitbleche ablöst. Dieser Effekt wird durch gekrümmte Leitbleche behoben. Diese sind so gekrümmt, dass sie am Anfang parallel zur Hauptströmungsrichtung angeordnet sind und am Ende parallel zur Gehäusewand der Querschnittserweiterung verlaufen. In diesem Fall, der in Abbildung 4-14 c) dargestellt ist, kann die Strömung länger der Krümmung der Leitbleche folgen und verteilt sich bereits innerhalb der Querschnittserweiterung homogen. An der Gehäusewand löst der äußere Teil der Rohrströmung zwar ab, wird jedoch durch die gekrümmten Leitbleche wieder nach außen gelenkt. Wird das mittlere Leitblech entfernt und werden nur die äußeren beiden gekrümmten Leitbleche beibehalten, ergibt sich die in Abbildung 4-14 d) dargestellte Strömungsverteilung. Durch das fehlende Leitblech in der Mitte wird der mittlere Strömungskanal nicht mehr in zwei Kanäle aufgeteilt und hat damit am Ende der Leitbleche den gleichen Öffnungswinkel wie die Querschnittserweiterung. Damit löst der mittlere Teil der Rohrströmung am Anfang der Leitbleche innen ab und wird zur Seite abgelenkt. Der äußere Bereich der Rohrströmung wird am Anfang der Querschnittserweiterung durch die Leitbleche nach außen gelenkt. Dadurch ergibt sich eine inhomogene Strömungsverteilung am Eintritt in den Membranstapel. Die Charakteristika der Strömungsverteilungen bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , die im Anhang 8.9 in Abbildung 8-7 dargestellt sind, sind denen bei niedrigerer Geschwindigkeit ähnlich. Die instationäre Ablösung wird durch den Einsatz von drei Leitblechen vermieden.

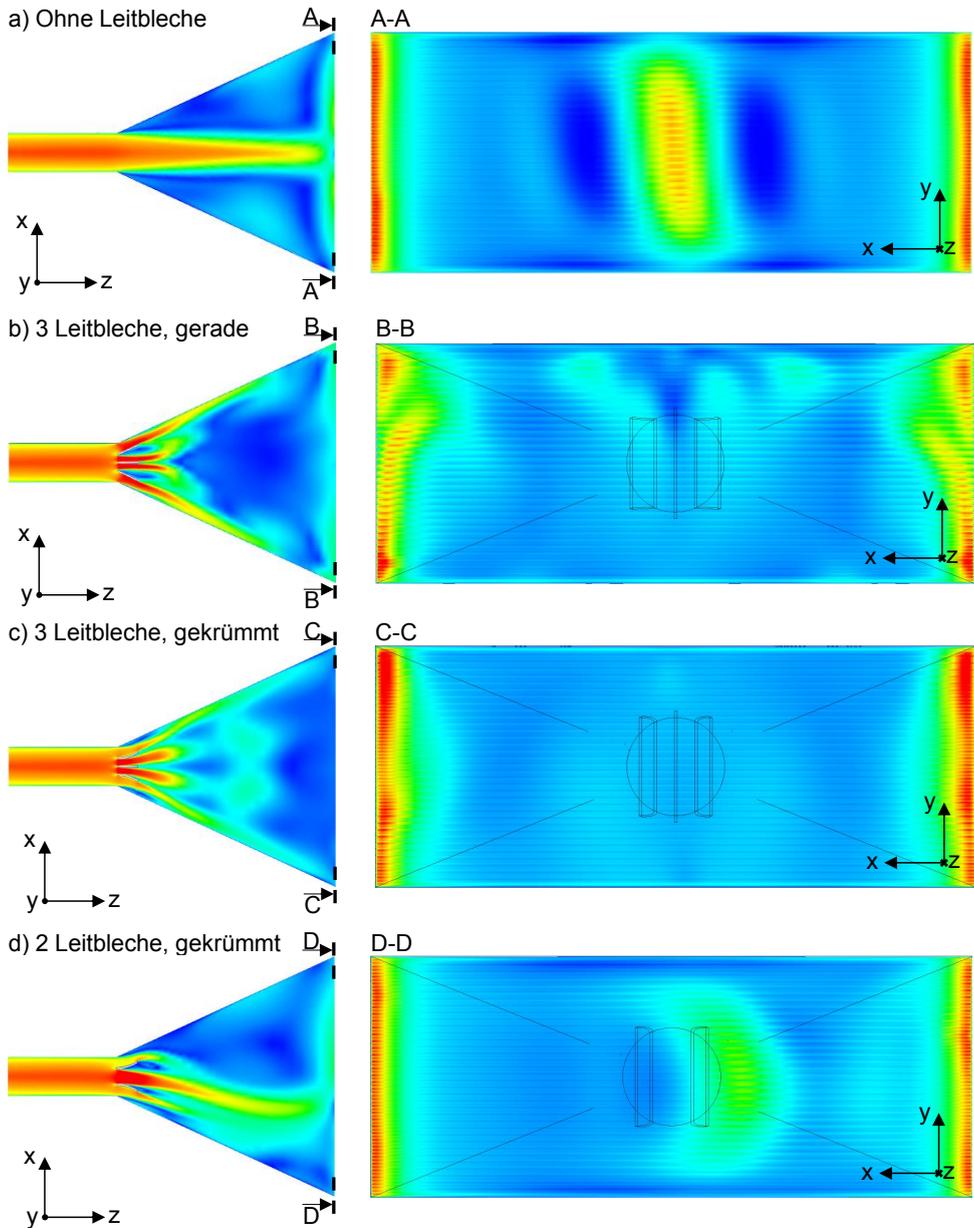
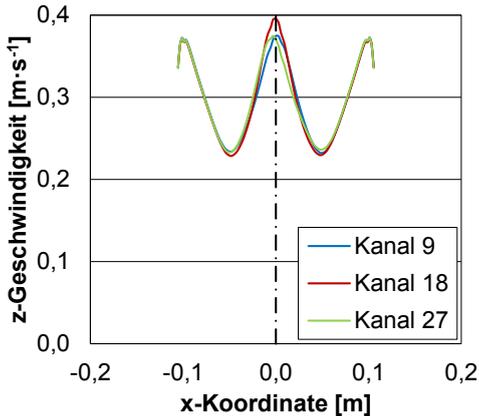


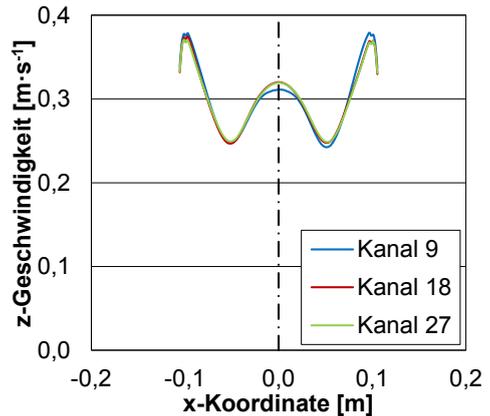
Abbildung 4-14: Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung und Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung der Anströmung des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen

Die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung innerhalb der Kanäle ist vor allem in der Modulmitte zum Teil inhomogen. Daher wird die Geschwindigkeitsverteilung innerhalb von drei Kanälen aus der Modulmitte ausgewertet. In Abbildung 4-15 sind Geschwindigkeitsverteilungen innerhalb ausgewählter Feedkanäle 10 mm hinter dem Eintritt in den Membranstapel für verschiedene Varianten der Einbauten in der Querschnittserweiterung dargestellt. Die Feedkanäle sind dabei innerhalb des Membranmoduls von oben nach unten nummeriert.

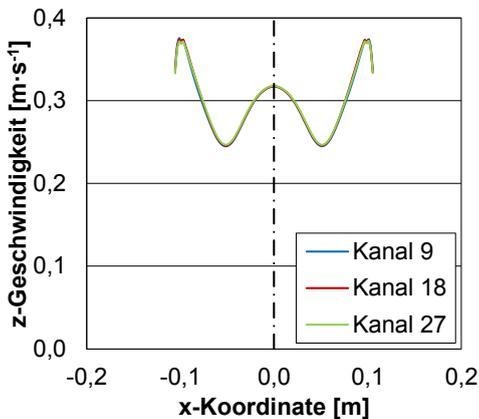
a) Ohne Leitbleche



b) 3 Leitbleche, gerade



c) 3 Leitbleche, gekrümmt



d) 2 Leitbleche, gekrümmt

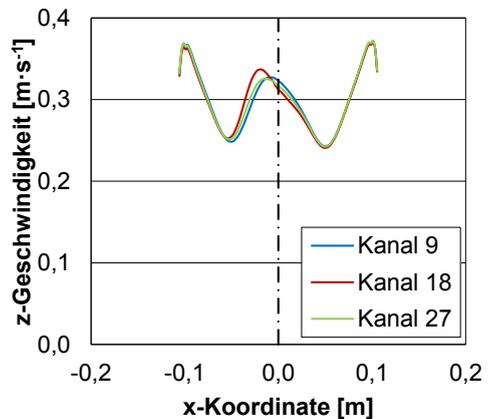


Abbildung 4-15: Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung innerhalb von drei Feedkanälen der Modulmitte – nummeriert von oben nach unten innerhalb des Moduls – 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels für eine Zieleintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Prototyp-Modul  
 a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen

Die Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung hat innerhalb jedes Kanals den gleichen qualitativen Verlauf entlang der x-Koordinate. Ganz am Rand des Feedkanals ist

am Anfang des Membranstapels noch die Querströmung in Richtung des Bypasses vorhanden, sodass die Strömung vermehrt in x-Richtung strömt und damit die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung reduziert. Die Permeatrohre stellen ein Strömungshindernis in den Feedkanälen dar. Dadurch ist die Geschwindigkeit in z-Richtung vor den Permeatöhrchen niedriger, da sich die Strömung schon zur Seite orientiert. Rechts und links von den Permeatöhrchen ist die Geschwindigkeit in z-Richtung erhöht. Sind Leitbleche in der Querschnittserweiterung eingebaut, wird ein Teil der Strömung des Zulaufrohres nach außen umgelenkt, sodass dort die Geschwindigkeit in z-Richtung höher als in der Mitte der Feedkanäle ist. Im Prototyp-Modul ohne Leitbleche trifft der Freistrahm mittig auf die Feedkanäle. Daher ist in diesem Fall dort die Geschwindigkeit so hoch wie am Rand.

Die inhomogenste Strömungsverteilung innerhalb der Feedkanäle ergibt sich für den Fall, dass keine Leitbleche verwendet werden. Zwar ist die Verteilung in jedem der drei Kanäle ähnlich, aber die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung schwankt innerhalb eines Kanals am stärksten. Aufgrund des seitlich abgelenkten Freistrahls für den Fall des Einsatzes von zwei gekrümmten Leitblechen verschiebt sich das mittlere Maximum des Geschwindigkeitsprofils in Kanal 18 leicht in negative x-Richtung. Dagegen ergibt sich die homogenste Verteilung am Eintritt in den Membranstapel beim Einsatz von drei Leitblechen, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind. Hier sind sowohl die Schwankungen innerhalb eines Feedkanals als auch die Unterschiede der Profile zwischen den Kanälen am geringsten.

Bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ist die Geschwindigkeitsverteilung innerhalb eines Kanals 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels ohne Einsatz von Leitblechen inhomogen. Wie in Abbildung 8-8 im Anhang 8.9 dargestellt ist, schwankt die Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung zwischen  $1,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $5,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Diese Schwankungen von ca.  $3,7 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  können durch den Einsatz von drei Leitblechen, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind, auf  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  reduziert werden.

Allerdings ist die Verteilung innerhalb der Feedkanäle nur am Anfang des Membranstapels inhomogen. In Strömungsrichtung gleicht sich dieses Profil aus. Die Unterschiede in den Geschwindigkeitsprofilen verschiedener Kanäle sind gering. Daher hat auch die homogenere Anströmung aufgrund des Einsatzes der Leitbleche keinen signifikanten Einfluss auf den Abtrenngrad. Der Abtrenngrad für das Prototyp-Modul ohne Leitbleche liegt bei ca. 66 %. Durch die homogenere Durchströmung der Feedkanäle am Anfang des Membranstapels wird hier die Abtrennperformance leicht verbessert. Daher liegt der Abtrenngrad des mit Leitblechen versehenen Prototyp-Moduls bei ca. 66,3 % bis 66,4 %.

### 4.3 Bypass-Strömung an der Membranverjüngung

Bei den Strömungssimulationen wird berücksichtigt, dass sich die Membrantasche am Rand durch die thermische Verschweißung jeweils auf ca. 0,3 mm verjüngt. In Abbildung 4-16 ist ein Ausschnitt des Randes des Membranstapels dargestellt. Oberhalb und unterhalb jeder Verschweißung ist jeweils ein Freiraum, durch den der Feedstrom ungehindert strömen kann. Die Feedspace gehen bis zum Rand des Membranmoduls, sodass ein Teil des Feedspace nicht über dem aktiven Teil der Membranfläche liegt. Auch hier strömt ein Teil des Feedstroms durch, wird allerdings verzögert durch den Widerstand des Spacers. Das Volumen zwischen zwei Verschweißungen, durch das ein Teil des Feedstroms strömt und damit nicht die aktive Membranfläche überströmt, wird im Folgenden Bypass genannt. Der Druckverlust in Strömungsrichtung ist über den gesamten durchströmten Querschnitt – also in den Feedkanälen und dem Bypass – gleich groß. Dort wo die Strömung ungehindert ist, ist damit die Strömungsgeschwindigkeit erhöht. Daher werden 10 mm hinter dem Eintritt in den

Membranstapel im Freiraum Strömungsgeschwindigkeiten von bis zu  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  erreicht, wohingegen der Spacer-gefüllte Teil des Querschnitts nur mit einer Geschwindigkeit von  $0,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bis  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  durchströmt wird. Insgesamt strömt 27 % des gesamten Feeds durch den Bypass. Dieser Anteil kann damit nicht an der Abtrennung teilnehmen.

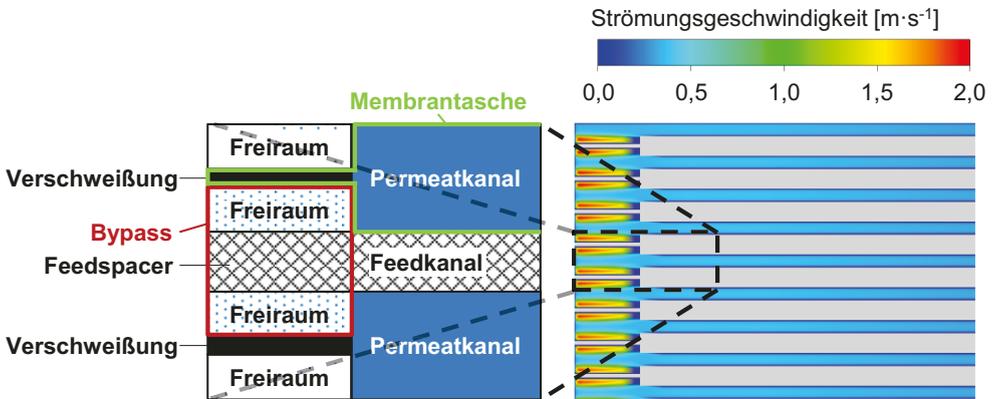


Abbildung 4-16: Bypass an der Verjüngung der Membrantaschen und Strömungsgeschwindigkeiten in den Feedkanälen und dem Bypass

Der Anteil der Bypass-Strömung am Gesamtmassestrom ist unabhängig davon, ob Leitbleche am Anfang der Querschnittserweiterung eingebaut werden, obwohl diese die äußere Strömung des Zulaufrohres seitlich ablenken und damit in Richtung Bypass leiten. In Abbildung 4-17 ist die Aufteilung des Gesamtmassestroms auf die Strömung durch die Feedkanäle und durch den Bypass für verschiedene Leitblech-Konfigurationen dargestellt.

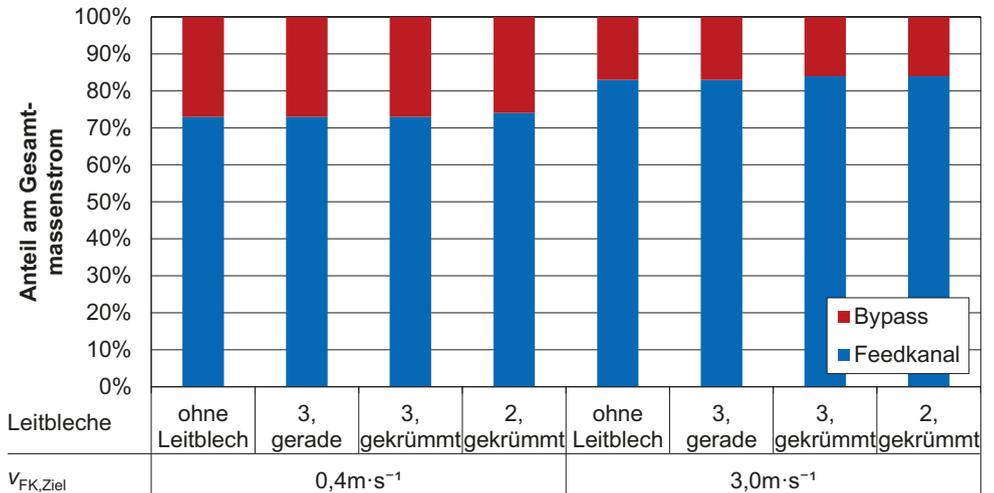


Abbildung 4-17: Aufteilung des Gesamtmassestroms auf die Strömung durch die Feedkanäle und durch den Bypass für verschiedene Leitblech-Konfigurationen

Der Anteil der Bypass-Strömung hängt nur davon ab, wie groß der Druckverlust in Hauptströmungsrichtung ist. Der Gesamtdruck und der Druckverlust in Hauptströmungsrichtung sind über den gesamten Querschnitt annähernd homogen. Wird die Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit auf  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  erhöht, steigt auch die Strömungsgeschwindigkeit im Bypass an. Allerdings ist dieser annähernd als Kanal mit geringem Querschnitt zu betrachten, in dem mit Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit der Druckverlust schneller ansteigt als in den Feedkanälen. Daher strömt bei erhöhten Geschwindigkeiten ein geringerer Anteil des Gesamtmassenstroms durch den Bypass. Für alle Konfigurationen von Leitblechen liegt dieser Anteil für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei ca. 16 %.

Am Anfang des Membranstapels hat diese Bypass-Strömung keine wesentlichen Auswirkungen auf die Triebkraft. Der  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Feed entspricht dem Partialdruck am Eintritt des Zulaufrohrs. Damit wird auch die Permeationsrate am Stapelanfang nicht beeinflusst. Da bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  jedoch nur 73 % des Feedstroms über die aktive Membranfläche strömen, reichert sich das  $\text{CO}_2$  schneller ab. Dadurch sinken der  $\text{CO}_2$ -Massenanteil sowie der  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Feed schneller, sodass die Triebkraft stärker gemindert wird. In Abbildung 4-18 ist der Verlauf des  $\text{CO}_2$ -Massenanteils im Feed dargestellt. Während der  $\text{CO}_2$ -Massenanteil in den Feedkanälen durch die Permeation auf bis zu 2 Gew.-% abnimmt, entspricht er im Bypass über der gesamten Lauflänge dem Anteil am Eintritt in das Membranmodul.

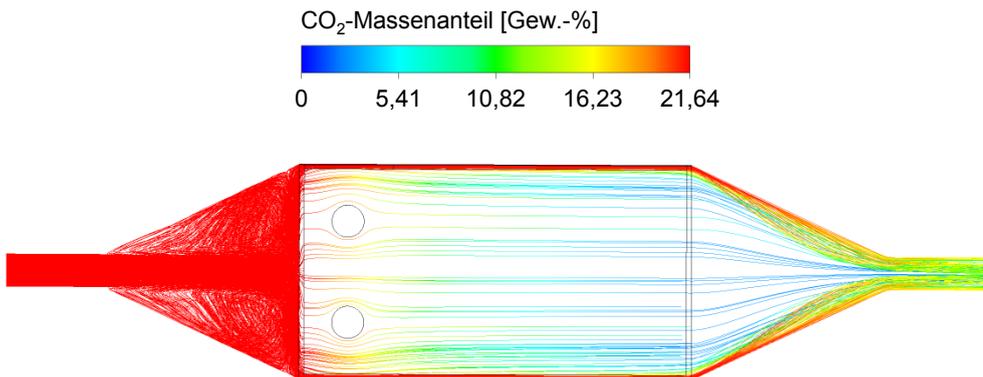


Abbildung 4-18: Verlauf des  $\text{CO}_2$ -Massenanteils im Feed bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$

Damit liegt der  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad für das Prototyp-Modul bei ca. 66 %, wenn eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , ein Feeddruck von 4 bar und ein Permeatdruck von 0,1 bar angenommen werden. Werden die Feedkanäle mit 100 % des Gesamtmassestroms überströmt und eine homogene Verteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle angenommen, ergibt sich ein Abtrenngrad bei gleichen Betriebsbedingungen von 81,3 %. Der Bau des Membranmoduls in Standardausführung führt dazu, dass gemäß Gl. 2-7 die Moduleffizienz 81,2 % beträgt. Dies bedeutet, dass nur 81,2 % des  $\text{CO}_2$ , welches bei idealer Überströmung durch die Membran permeiert, im realen durchströmten Modul abgetrennt wird. Eine Abdichtung des Bypasses in den CFD-Simulationen wird mittels poröser Körper mit geringer Porosität realisiert. Damit wird berücksichtigt, dass diese Abdichtung in Realität nicht perfekt ist und ein gewisser Bypass immer vorhanden ist. Mit abgedichtetem Bypass ergibt sich ein Abtrenngrad von 78,8 %. Damit erhöht sich die Moduleffizienz auf ca. 97 %. Werden Leitbleche

eingesetzt, erhöht sich unabhängig von deren Konfiguration der Abtrenngrad des abgedichteten Moduls um 0,4 %-Punkte auf 79,2 %.

Die verringerte Abtrennperformance des Membranmoduls im Vergleich zu einem ideal durchströmten Modul ist somit hauptsächlich auf die Bypass-Strömung zurückzuführen. Dies bestätigt die Simulation des Membranmoduls in Aspen Plus®, bei der ebenfalls 27 % des Feedstroms vor Eintritt in das Membranmodul abgezweigt werden und hinterher mit dem Retentat des Moduls vermischt werden.

#### **4.4 Erkenntnisse über die optimierte Strömungsführung im Gegenstrommodul**

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der fluiddynamischen Optimierung der Strömungsführung im Gegenstrommodul zusammengefasst. Den Ausgangspunkt dieser Optimierung bildet ein Membranmodul mit der Größe eines Prototyps. Die Membranfläche dieses Prototyp-Moduls beträgt  $5,66 \text{ m}^2$ , die sich auf 35 Membrantaschen mit einer aktiven Breite von je  $0,211 \text{ m}$  und einer aktiven Länge von je  $0,392 \text{ m}$  aufteilt. Die CFD-Simulationen dieses Moduls in Standardausführung – also ohne Einbauten und Optimierungsmaßnahmen – visualisieren die Strömung und zeigen verbesserungswürdige Strömungsführungen auf. Für diese Defizite werden Optimierungsmaßnahmen untersucht, damit das Membranmodul möglichst homogen überströmt wird und sich die Abtrennperformance der Performance bei homogener Durchströmung des Moduls annähert. Die wesentlichen Ergebnisse sind die Folgenden:

- Die verifizierte ersatzweise Modellierung der Spacer-gefüllten Feed- und Permeatkanäle mithilfe von porösen Körpern ermöglicht die Berücksichtigung des Druckverlustes durch die Spacer und der Wirkung der Spacer als Strömungshindernis.
- Die inhomogene Strömungsverteilung kurz hinter dem Anfang des Membranstapels kann durch den Einsatz von Leitblechen am Anfang der Querschnittserweiterung vor allem für höhere Eintrittsgeschwindigkeiten homogenisiert werden.
- Die Moduleffizienz liegt vor allem wegen der Bypass-Strömung bei 81,2 % und kann durch Abdichtung des Bypasses auf ca. 97 % gesteigert werden.

Diese Kernaussagen sind auf folgende Analysen zurückzuführen:

In Kapitel 4.1 wurde der Aufbau des Prototyp-Moduls vorgestellt, welches mittels fluiddynamischer Simulationen hinsichtlich der Überströmung der Membrantaschen analysiert wurde. Bei der Wahl der Modulgeometrie wurden Restriktionen bezüglich der Herstellung eines Prototyps beachtet, sodass dieser in die Pilotanlage des Helmholtz-Zentrum Geesthacht integriert werden kann. Die Größe der Membrantaschen wurde so gewählt, dass sie an der Anlage zur Herstellung einer Tasche beim HZG gefertigt werden können. Für die Spacer-gefüllten Kanäle wurde ein Ersatzmodell entwickelt und implementiert, sodass statt des Spacers ein poröser Körper, der die gleiche Druckverlustcharakteristik und Porosität wie der Spacer hat, simuliert wird. Dadurch muss die komplexe Geometrie der Spacer nicht in den CFD-Simulationen abgebildet werden. Das Ersatzmodell wurde verifiziert. Im Prototyp-Modul beträgt der Druckverlust bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ca. 4,5 mbar und erhöht sich für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  auf ca. 58 mbar. Zur Reduzierung der Einlaufstrecke wird über eine benutzerdefinierte Funktion ein Geschwindigkeitsprofil am Eintritt des Zulaufrohrs vorgegeben. Der Abtrenngrad des in ANSYS® FLUENT® untersuchten Membranmoduls liegt für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , einem Feeddruck von 4 bar und einem Permeatdruck von 0,1 bar bei ca. 66 %. Bei den gleichen Bedingungen beträgt der Abtrenngrad für ein ideal durchströmtes

Membranmodul 81,3 %, sodass die Moduleffizienz bei ca. 81,2 % liegt. Die wesentlichen Defizite der Strömungsverteilung des Membranmoduls sind die inhomogene Geschwindigkeitsverteilung am Eintritt in den Membranstapel und die Bypass-Strömung.

In Kapitel 4.2 wurde die inhomogene Anströmung des Membranstapels untersucht. Die Strömung löst am Anfang der Querschnittserweiterung geometrisch induziert ab, da der Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung ca. 50° beträgt. Die Spacer-gefüllten Kanäle und die Membrantaschen stellen ein Strömungshindernis für die sich somit bildende Freistrahströmung dar. Dadurch wird die Strömung seitlich abgelenkt und strömt nicht nur dort, wo der Freistrah auf den Membranstapel trifft, in die Feedkanäle. Dennoch ergibt sich am Anfang des Membranstapels eine inhomogene Geschwindigkeitsverteilung innerhalb der Feedkanäle. Die Aufteilung des Gesamtmassenstroms auf die Feedkanäle ist hingegen homogen. Leitbleche, die am Anfang der Querschnittserweiterung eingebaut werden, sorgen dafür, dass die Strömung auch innerhalb der Querschnittserweiterung schon homogen verteilt wird und der Membranstapel somit gleichmäßig angeströmt wird. Die homogenste Verteilung ergibt sich für die Konfiguration mit drei Leitblechen, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind.

In Kapitel 4.3 wurde die Bypass-Strömung am Rand des Membranstapels untersucht. Aufgrund der thermischen Verschweißung der Membrantasche am Rand verjüngt sich die Tasche dort und es entsteht ein Freiraum, durch den ein Teil des Feedstroms ungehindert strömen kann. Bei hoher Abtrennung macht sich dies bemerkbar, da dieser Teil die trennaktive Membranfläche nicht überströmt, somit nicht abgetrennt werden kann und der Abtrenngrad bezogen auf den gesamt eintretenden CO<sub>2</sub>-Massenstrom damit nach oben hin begrenzt ist. Wie in Abbildung 4-19 dargestellt ist, erhöht sich durch Abdichtung des Bypasses die Moduleffizienz von 81,2 % auf ca. 97 %. Die homogene Anströmung durch den Einsatz der Leitbleche führt zu keiner signifikanten Verbesserung des Abtrenngrades.

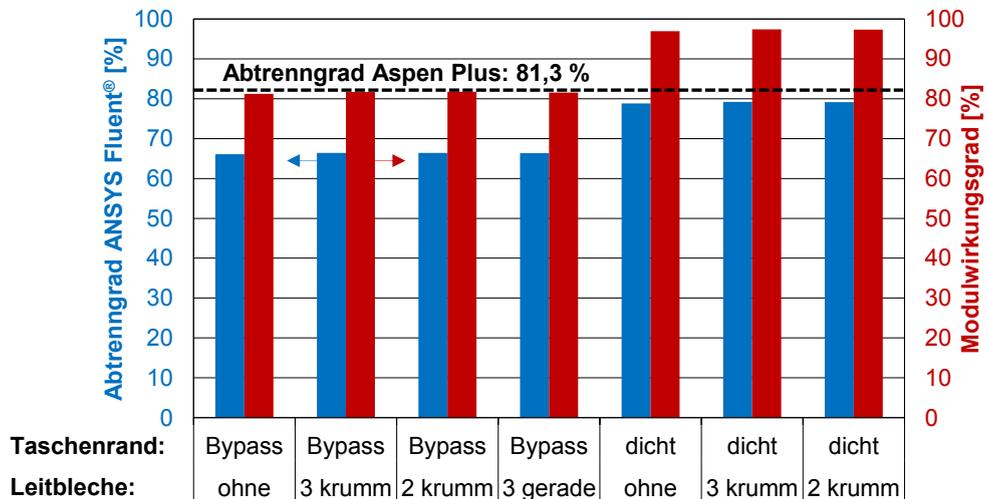


Abbildung 4-19: Vergleich der Abtrenngrade aus den Strömungssimulationen in ANSYS® FLUENT® und der Simulation des Membranmoduls mit den gleichen Randbedingungen in Aspen Plus® sowie die Moduleffizienz; Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit: 0,4 m·s<sup>-1</sup>; Feeddruck: 4 bar; Permeatdruck: 0,1 bar

## 5 Kostenbasierte Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab

Das folgende Kapitel beschreibt die Auslegung des Membranmoduls im Kraftwerksmaßstab. Während der prinzipielle Aufbau des Gegenstrommoduls im Kraftwerksmaßstab dem Aufbau des Prototyp-Moduls gemäß Kapitel 4.1.1 gleicht, weist die konkrete Modulgeometrie mehrere Freiheitsgrade auf, die in Kapitel 5.1 beschrieben werden. Ein Teil dieser Freiheitsgrade wird unter Berücksichtigung von Restriktionen, die ebenfalls in Kapitel 5.1 aufgeführt werden, in Kapitel 5.2 für ein Referenzmodul festgelegt. Das in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup> programmierte Modell des Membranmoduls wird unter Annahme der Geometrie des Referenzmoduls in die Prozesssimulation in Aspen Plus<sup>®</sup> integriert. Gemäß den Anforderungen aus Kapitel 2.5.2 werden die fehlenden Größen der Referenzmodule in beiden Trennstufen des in Kapitel 2.5.3 beschriebenen CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses dimensioniert. Das Ergebnis dieser Prozesssimulation des Referenzmoduls bildet den Ausgangs- und Vergleichspunkt für die Auslegung. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten des Abtrennprozesses mit diesem Referenzmodul werden ebenfalls bestimmt. Erste Geometrie Größen werden auch für weitere Auslegungsrechnungen als konstant festgelegt. Weiterhin wird die Sensitivität der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten bezüglich einiger Parameter untersucht. Systematisch werden einzelne Geometriemaße verändert, wobei zunächst ein einzelnes Modul hinsichtlich technischer Kriterien wie die benötigte Membranfläche für einen vorgegebenen Abtrenngrad zur Optimierung untersucht wird. Dabei werden die Randbedingungen des Abtrennprozesses wie der Prozessabtrenngrad und die CO<sub>2</sub>-Reinheit berücksichtigt und eingehalten. Wird abweichend von den Parametern des Referenzmoduls ein neues Optimum bezüglich der technischen Kriterien gefunden, wird in einem weiteren Schritt untersucht, ob die neue Konfiguration die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten senkt. Die Kostenanalyse stellt sicher, dass für konkurrierende Trends technischer Kriterien ein Optimum gefunden werden kann und dass der Einfluss einer technischen Verbesserung in der einen Trennstufe auf die andere Trennstufe berücksichtigt wird.

Der Fokus in Kapitel 5.3 liegt auf der kostenbasierten Optimierung der Kanalhöhen und der Eintrittsgeschwindigkeiten des Feedstroms in den Membranstapel in beiden Trennstufen. Mit der Änderung der Eintrittsgeschwindigkeit wird gleichzeitig die Anzahl der parallel betriebenen Membranmodule je Trennstufe variiert. Alternative Reihenschaltungen der Membranmodule innerhalb einer Trennstufe werden in Kapitel 5.4 miteinander verglichen und es wird eine die Membranfläche minimierende Verschaltung abgeleitet. In Kapitel 5.5 wird untersucht, ob und unter welchen Bedingungen der Betrieb eines Teils der Membranmodule im Gleichstrom vorteilhaft ist. Die hinsichtlich technischer Kriterien wie beispielsweise der Packungsdichte optimale Modulhöhe und -breite wird in Kapitel 5.6 ermittelt. In der vorliegenden Arbeit wird der Einfluss wichtiger Prozessparameter auf die Modulgeometrie und die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten in Kapitel 5.7 untersucht. Hierbei wird zum einen analysiert, wie sich die Modulgeometrie bei Variation der Triebkraft ändert. Zum anderen wird die Sensitivität der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten und der Modulgeometrie bezüglich der Membraneigenschaften dargestellt. Der Teillastbetrieb konventioneller Kraftwerke wird in Zukunft aufgrund der vermehrten Einspeisung erneuerbarer Energien immer häufiger werden. Daraus ergeben sich neue Randbedingungen bezüglich der CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Ausgehend von der Auslegung für Vollastbetrieb werden – wie in Kapitel 5.7.3 beschrieben – Module deaktiviert, bis für den Teillast-Betriebspunkt eine bezüglich der variablen Betriebskosten optimierte Verschaltung unter Berücksichtigung der geforderten CO<sub>2</sub>-Reinheit gefunden wird.

## 5.1 Freiheitsgrade und Restriktionen in der Modulauslegung

Das Prototyp-Modul ist für Versuche an einer am HZG vorhandenen Pilotanlage ausgelegt. Die Membranmodule im Kraftwerksmaßstab werden hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses optimiert. Dabei sind die Bewertungskriterien aus Kapitel 2.2 zu berücksichtigen. Ziel ist es, die relevanten Abmessungen der Membranmodule zu dimensionieren, wobei der prinzipielle Aufbau des Gegenstrommoduls gemäß Abbildung 4-1 erhalten bleibt. Dieser Aufbau garantiert eine einfache und kostengünstige Herstellung des Membranmoduls. Die Membrantaschen werden alternierend mit Feedspacern übereinander gestapelt, es werden keine Einbauten wie beispielsweise Umlenkungen im Membranstapel benötigt und gleichzeitig ist eine einfache Dichtung des Permeatvolumens gegenüber dem Feedvolumen realisierbar. Auch ein Membranwechsel ist möglich, indem der Gehäusedeckel demontiert, die alten Membrantaschen entfernt und die neuen Membrantaschen eingelegt werden. Wird eine Abdichtung des Bypassvolumens über einen aushärtenden Schaum umgesetzt, ist der komplette Membranstapel auf einmal auszutauschen. Bei einer Störung beziehungsweise einem Defekt innerhalb eines Membranmoduls muss ohnehin der komplette Stapel ausgetauscht werden, da eine Kontrolle jeder einzelnen Tasche bei einer hohen Anzahl an Membrantaschen zu aufwendig und kostenintensiv wäre.

Für die Konzeption und Auslegung der Membranmodule der ersten und zweiten Trennstufe sind zunächst die Freiheitsgrade der Dimensionierung im Kraftwerksmaßstab zu nennen. Ein Teil dieser Freiheitsgrade wird durch Restriktionen eingegrenzt oder sogar festgelegt. Diese Restriktionen werden in diesem Kapitel ebenfalls beschrieben. Abbildung 5-1 gibt einen Überblick über die wesentlichen Zusammenhänge der wichtigsten Abmessungen der Membranmodule, die den größten Einfluss auf die Abtrennperformance haben. Die Freiheitsgrade, die in der linken Spalte der Abbildung 5-1 aufgelistet sind, sind variable Eingangsgrößen in das Auslegungsmodell. Zu diesen Freiheitsgraden zählen die Breite der Membrantaschen, die Höhe der Feed- und Permeatkanäle, die Eintrittsgeschwindigkeit in den Taschenstapel sowie die Anzahl der Kompartimente. Um die minimierten CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten zu erhalten, werden diese Freiheitsgrade in den Kapiteln 5.3 bis 5.6 systematisch variiert und optimiert. Ein weiterer Freiheitsgrad in der Modulgestaltung ist die Wahl der Strömungsführung. Die Durchmesser der Anschlussleitungen – also der Feed-, Retentat- und Permeatrohre – werden ebenfalls in Kapitel 5.6 dimensioniert.

Aus den Eingangsgrößen werden unter Berücksichtigung der Randbedingungen, die in der rechten Spalte der Abbildung 5-1 beschrieben sind, die restlichen Variablen der Modulgeometrie bestimmt. Die Anzahl der Taschen ergibt sich aus der Modulhöhe und den Höhen der Feed- und Permeatkanäle. Jede Membrantasche wird von zwei Feedkanälen umschlossen, damit sowohl die Ober- als auch die Unterseite der Tasche mit Feed überströmt werden. Daher ist die Anzahl an Feedkanälen um eins höher als die Anzahl der Membrantaschen. Bei vorgegebener Modulhöhe bestimmen die Höhen eines Feedkanals und eines Permeatkanals die Anzahl Taschen im Membranstapel. Dabei wird unterstellt, dass die Modulhöhe der Modulbreite entspricht. Diese Randbedingung reduziert zum einen die Anzahl der Freiheitsgrade, zum anderen ist mit dieser Geometrie eine symmetrische Anströmung des Membranstapels gewährleistet. Weicht die Modulhöhe von der Modulbreite ab, ändert sich lediglich die Anzahl der parallel geschalteten Module, da pro Modul weniger Membrantaschen verbaut sind, nicht aber die Geometrie der Membrantaschen und -module.

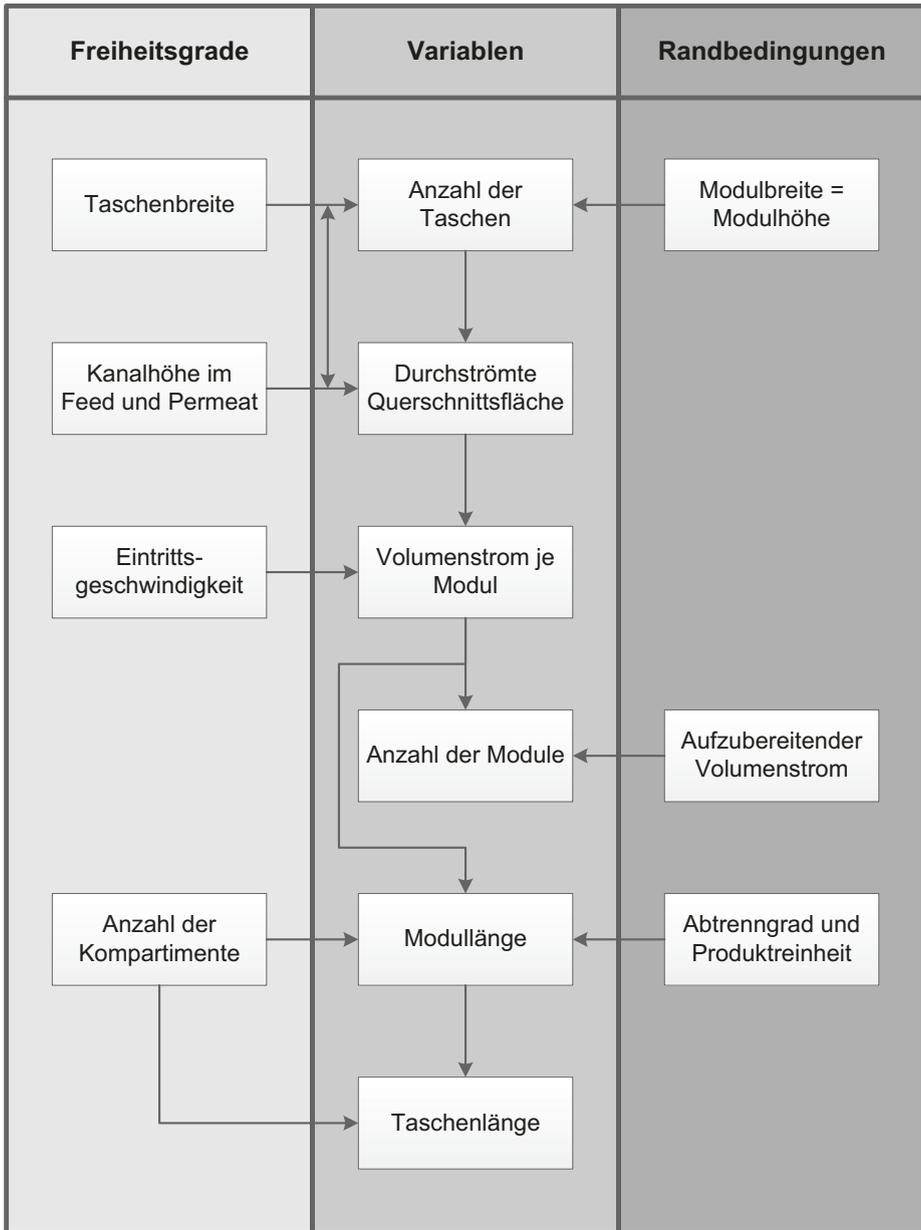


Abbildung 5-1: Freiheitsgrade und Randbedingungen bei der Wahl der Modulgeometrie

Aus der Modulbreite ergibt sich zusammen mit der Kanalhöhe und der Anzahl der Kanäle beziehungsweise Membrantaschen die Querschnittsfläche der Feed- und Permeatkanäle. Ein Teil dieser Querschnittsfläche ist mit Spacern besetzt, sodass die tatsächlich durchströmte Querschnittsfläche über die Porosität des Spacers bestimmt wird. Mit steigendem durchströmtem Querschnitt der Feedkanäle wird bei gegebener Eintrittsgeschwindigkeit je

Modul ein größerer Volumenstrom verarbeitet. Ebenfalls steigt der Volumenstrom je Modul mit erhöhter Eintrittsgeschwindigkeit und höherer Dichte des Gasgemisches. Aus dem Volumenstrom je Modul leitet sich die Anzahl der parallel geschalteten Membranmodule für einen gegebenen aufzubereitenden Gesamtvolumenstrom je Trennstufe ab. Die Anzahl der Module wird auf eine ganze Zahl gerundet, sodass die tatsächliche Eintrittsgeschwindigkeit minimal von der vorgegebenen abweicht. Im Extremfall, bei dem wenige, dafür sehr große Module mit hohen Eintrittsgeschwindigkeiten parallel geschaltet sind, kann diese Abweichung auf einstellige Prozentwerte ansteigen<sup>10</sup>. Die Länge des Membranmoduls ist abhängig vom geforderten Trennergebnis – also dem CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad und der CO<sub>2</sub>-Reinheit –, der Trennstufe beziehungsweise des gesamten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses und dem Volumenstrom je Modul. Wird ein Membranmodul gemäß Abbildung 2-12 in Kompartimente unterteilt, beeinflusst die Anzahl der Kompartimente sowohl die Modullänge als auch die Länge eines Kompartiments beziehungsweise einer Tasche.

Der Fertigungsprozess der Flachmembranen über das Dip-Coating-Verfahren limitiert die maximal herstellbare Breite einer Membrantasche. Zur industriellen Herstellung werden die Stützwliese über Walzen gelenkt, wobei eine Rolle in die Beschichtungslösung – also die trennaktive Schicht – eintaucht und diese auf das Vlies aufträgt. Da sich die schweren Walzen aufgrund des Eigengewichts in der Mitte bei steigender Walzenbreite leicht durchbiegen können, ist eine homogene Auftragung der Beschichtungslösung nicht mehr gewährleistet. Heutige Beschichtungsanlagen haben eine Breite von 0,6 m bis 2 m, sodass in der vorliegenden Arbeit eine maximale Breite von 2 m angenommen wird. In der Papierindustrie werden hingegen bereits mehrere Meter breite Walzen eingesetzt. Somit ist zukünftig eine Breite der Membrantasche von mehreren Metern denkbar.

Die Kanalhöhen sind durch die minimal herstellbare Dicke der Feed- und Permeatspacer sowie der Drainage- und Dichtungselemente nach unten limitiert. Heutige Feedspacer, die in Spiralwickelmodulen für die Umkehrosmose eingesetzt werden, haben eine Dicke von 0,6 mm bis 0,9 mm [126]. Die Dichtung in einem Taschenmodul und im Gegenstrommodul funktioniert jedoch – anders als bei Spiralwickelmodulen – mittels Dichtungsringen, die heutzutage standardmäßig für Taschenmodule mit der Dicke von 1 mm gefertigt werden. Allerdings sollte die Dicke von 1 mm im Feedkanal auch in Zukunft nur unterschritten werden, wenn gewährleistet ist, dass das Rauchgas vor dem CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess entstaubt wird, da sonst gemäß Kapitel 2.5.2 die Reinigungsintervalle der Membranmodule zu klein werden. Die minimale Kanalhöhe wird daher in der vorliegenden Arbeit auf 1 mm begrenzt.

Der Feed- und Permeatstrom je Membranmodul geben für eine festgelegte, maximale Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren die Durchmesser dieser Rohrleitungen vor. Es wird angenommen, dass in den Zu- und Ablaufrohren eine Geschwindigkeit von 10 m·s<sup>-1</sup> nicht überschritten werden soll. Diese Annahme führt zu einer konservativen Abschätzung, da industrielle Gasleitungen meist mit höheren Strömungsgeschwindigkeiten durchströmt werden. Die Lage der Permeatrohre hängt zum einen vom Durchmesser der Rohre ab. Zum anderen ist ein gewisser Abstand zum Eintritt in den Membranstapel einzuhalten, damit die Membrantaschen die Permeatrohre vollständig umschließen können und nicht einreißen. Erweist sich die Kombination von Gleichstrom im ersten Modulabschnitt und Gegenstrom im zweiten Modulabschnitt als vorteilhaft, ist die Position der Permeatrohre zusätzlich von der

---

<sup>10</sup> Beispielsweise beträgt die Abweichung zwischen der vorgegebenen Eintrittsgeschwindigkeit von 3,3 m·s<sup>-1</sup> und der tatsächlichen Eintrittsgeschwindigkeit von 3,033 m·s<sup>-1</sup> ca. 8 %, wenn sechs Module mit je einer Membranfläche von 13.200 m<sup>2</sup> parallel geschaltet sind.

optimalen Aufteilung der beiden Modulabschnitte abhängig. Die Anzahl der Permeatrohre je Modul beziehungsweise je Kompartiment richtet sich nach den sonstigen Abmessungen der Membrantaschen. Nach oben hin ist der Durchmesser eines Permeatrohres durch die Taschenbreite und -länge begrenzt. Der konstruktive Aufwand von mehreren Permeatrohren und deren Zusammenführung wird ebenfalls in der Dimensionierung berücksichtigt. Es wird eine gleichmäßige Aufteilung der Permeatrohre über die Modulbreite angenommen.

Die Gestaltung des Modulgehäuses umfasst einerseits die Auslegung der Wandstärke, da das Membranmodul je nach Trennstufe bei Überdruck betrieben wird. Andererseits ist das Material des Modulgehäuses so zu wählen, dass es unter den im Rauchgas vorliegenden Bedingungen chemisch und thermisch beständig ist. Während die Membranmodule in der ersten Trennstufe keinem Überdruck ausgesetzt sind, wird das Modulgehäuse der zweiten Trennstufe als rechteckiger Druckbehälter nach den AD 2000-Regelwerken ausgelegt. In der zweiten Trennstufe beträgt der Druck auf der Feedseite 4 bar, sodass sich eine minimale Wandstärke von 8 mm ergibt [125]. Für die Module der ersten Trennstufe wird eine Wandstärke von 3 mm angenommen. Die Wandstärken gehen nur in die Bestimmung der Packungsdichte ein und haben ansonsten keine Auswirkungen auf die Modulgestaltung. Wird die  $\text{SO}_2$ -Konzentration des Rauchgases in der Kühlwäsche mittels Natronlauge gemindert und das Rauchgas vor der ersten Membrantrennstufe getrocknet, besteht eine geringe Korrosionsgefahr des Modulgehäuses. Damit ist die Wahl des Gehäusematerials nicht auf korrosionsbeständige Werkstoffe beschränkt.

## 5.2 Referenzmodul im Kraftwerksmaßstab

Unter Berücksichtigung der in Kapitel 5.1 beschriebenen Restriktionen werden in Kapitel 5.2.1 die Freiheitsgrade der Modulgeometrie für jede Trennstufe für ein Referenzmodul festgelegt. Dieses Referenzmodul dient als Grundlage der Optimierungen. In Kapitel 5.2.2 werden die Ergebnisse der Prozesssimulation dargestellt, bei der dieses Referenzmodul in den  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess integriert ist. Erst hier kann die Modullänge bestimmt werden, die sich aus dem  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad und der geforderten Reinheit des  $\text{CO}_2$ -Produktstroms ergibt. Die Stromgestehungskosten des Kraftwerksprozesses inklusive nachgeschaltetem  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess mit dem Referenzmodul werden in Kapitel 5.2.3 quantifiziert. Außerdem werden die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten des Abtrennprozesses mit Einsatz des Referenzmoduls beziffert.

### 5.2.1 Festlegung der Modulgeometrie des Referenzmoduls

Für die Modellierung des Membranmoduls in den Prozesssimulationen mittels Aspen Plus® wird eine vereinfachte Geometrie angenommen. Das Modul besteht aus einer bestimmten Anzahl an Feed- und Permeatkanälen, die eine bestimmte Breite, Länge und Höhe aufweisen. Der Volumenstrom eines Moduls wird gleichmäßig auf die Feedkanäle aufgeteilt und innerhalb jedes Kanals wird eine homogene Überströmung über die gesamte Breite vorausgesetzt. Das Referenzmodul wird so dimensioniert, dass sich eine zukünftig technisch realisierbare Variante ergibt. Die Gestaltung des Zulaufbereichs sowie die Anordnung und der Durchmesser der Permeatrohre werden für das Referenzmodul nicht ausgelegt und auch nicht in den Prozesssimulationen mittels Aspen Plus® berücksichtigt.

Die Breite des Membranmoduls ist gemäß Kapitel 5.1 durch die maximale Walzenbreite in der vorliegenden Arbeit auf maximal 2 m limitiert. Die Kanalhöhe im Permeat von 1,5 mm bleibt vom Prototyp-Modul erhalten, da für diese Kanalhöhe bereits in der Testanlage Spacer und Dichtungen eingesetzt werden. Für einen Spacer-gefüllten Permeatkanal gilt damit ein hydraulischer Durchmesser von 1,2 mm. Der Feedkanal ist im Vergleich zum Prototyp-Modul

mit 2 mm doppelt so hoch, sodass im Feedkanal zwei Lagen an Feedspacern übereinander liegen. Dies erhöht den hydraulischen Durchmesser des Feedkanals auf 1,4 mm, sodass bei gleicher Überströmungsgeschwindigkeit ein geringerer Druckverlust auftritt. Unter der in Kapitel 5.1 eingeführten Annahme, dass die Modulhöhe der Modulbreite entspricht, passen bei den vorgestellten Kanalhöhen und einer Modulhöhe von 2 m 571 Membrantaschen in ein Membranmodul. Da jede Membrantasche beidseitig vom Feed überströmt werden soll, ist die Anzahl der Feedkanäle um eins höher als die Anzahl der Membrantaschen. Damit werden je Modul 572 Feedkanäle durchströmt, die je 2 m breit und 2 mm hoch sind. Aufgrund der Porosität des Feedspacers von 78,3 % können im Mittel nur 78,3 % der gesamten Querschnittsfläche der Feedkanäle frei durchströmt werden. Es ergibt sich eine durchströmte Querschnittsfläche von 1,792 m<sup>2</sup>.

Im Folgenden ist mit dem Begriff Eintrittsgeschwindigkeit die Geschwindigkeit gemeint, mit dem der Feed in den Membranstapel beziehungsweise in jeden Feedkanal einströmt. Dies ist somit die Überströmungsgeschwindigkeit der Membranen am Eintritt in den Membranstapel, die sich mit der Lauflänge ändert. Diese Eintrittsgeschwindigkeit ist nicht mit der Strömungsgeschwindigkeit in den Zulaufrohren der Membranmodule zu verwechseln. Die Eintrittsgeschwindigkeit wird für das Referenzmodul zu 1 m·s<sup>-1</sup> festgelegt. Zusammen mit der Querschnittsfläche ergibt sich ein Volumenstrom je Modul von ca. 1,792 m<sup>3</sup>·s<sup>-1</sup>. Die Anzahl der in beiden Trennstufen benötigten Module richtet sich nach den insgesamt zu verarbeitenden Normvolumen- beziehungsweise Stoffmengenströmen. Diese wiederum können erst nach Integration der Module in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess bestimmt werden, da erst durch die Prozesssimulation die tatsächlichen zu verarbeitenden Stoffströme, die Temperaturen und die Feeddrücke in beiden Trennstufen bestimmt werden. Auch die Modullänge kann erst unter Beachtung des gewünschten Trennergebnisses über die Prozesssimulationen für das Referenzmodul bestimmt werden.

### 5.2.2 Integration des Referenzmoduls in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess

Als Referenz für die nachfolgende Optimierung der Modulgeometrien wird der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess mit in beiden Trennstufen integriertem Referenzmodul, welches die in Kapitel 5.2.1 festgelegte Geometrie hat, ausgelegt. Zudem werden die Längen der Membranmodule der ersten und zweiten Trennstufe durch das in Kapitel 2.5.2 definierte Ziel eines Prozessabtrenngrades von 70 % und einer geforderten CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% bestimmt. Dieses Trennergebnis wird mit einer bestimmten Konstellation von Abtrenngraden in der ersten und zweiten Trennstufe erreicht. In Abbildung 5-2 wird dargestellt, wie sich die CO<sub>2</sub>-Reinheit im Produktstrom ändert, wenn der Abtrenngrad der ersten Trennstufe variiert wird. Dabei wird der Abtrenngrad der zweiten Trennstufe jeweils so eingestellt, dass der Prozessabtrenngrad gemäß Gl. 2-6 immer 70 % beträgt. Bei einem Abtrenngrad in der ersten Trennstufe von ca. 80 % wird die geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% erreicht. Gleichzeitig beträgt der Abtrenngrad in der zweiten Trennstufe ca. 58,5 %.

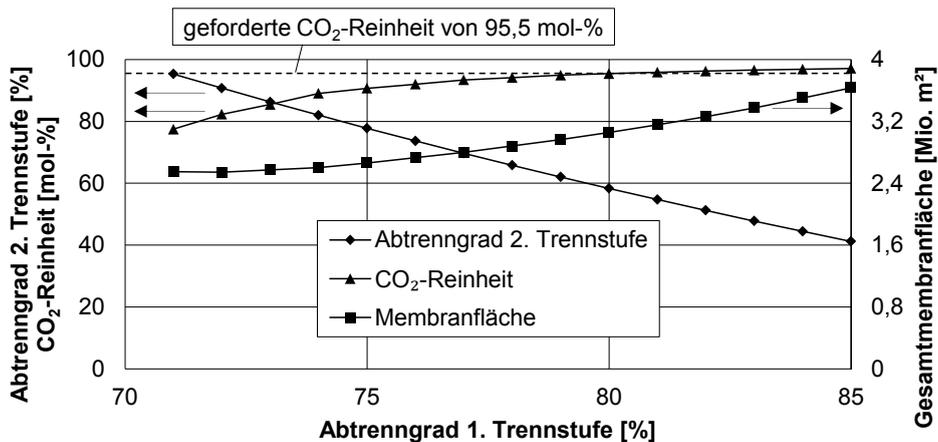


Abbildung 5-2: Abtrenngrad der zweiten Trennstufe, CO<sub>2</sub>-Reinheit im CO<sub>2</sub>-Produktstrom und Gesamtmembranfläche bei Variation des Abtrenngrades der ersten Trennstufe für einen Prozessabtrenngrad von 70 %; gestrichelte Linie kennzeichnet die erforderliche CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-%

Die ansteigende CO<sub>2</sub>-Reinheit im Produktstrom mit steigendem Abtrenngrad in der ersten Trennstufe wird mit Hilfe von Abbildung 5-3 erläutert. Die erste Trennstufe ist grundsätzlich für einen hohen Prozessabtrenngrad zuständig und der Einsatz der zweiten Trennstufe sorgt für die hohe Reinheit des Produktstroms. Die CO<sub>2</sub>-Reinheit des Produktstroms erhöht sich dennoch mit steigender Abtrennung in der ersten Trennstufe, weil hierdurch die zweite Trennstufe kürzer werden kann, um den Prozessabtrenngrad zu erreichen. Dies verdeutlicht der Verlauf der Membranfläche bei Variation des Abtrenngrades der ersten Trennstufe in Abbildung 5-3 (links). Kürzere Module in der zweiten Trennstufe sorgen für einen höheren CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeat, da sich die Triebkraft für die langsamer permeierenden Komponenten – also Stickstoff, Sauerstoff und Argon – erst bei wesentlicher Abreicherung des CO<sub>2</sub> in den Feedkanälen erhöht. Somit permeiert am Modulanfang hauptsächlich CO<sub>2</sub> durch die Membran. Außerdem ist der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Rückführungsstrom durch die geringere Abreicherung im Retentat der zweiten Trennstufe höher, sodass auch der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Feed der ersten Trennstufe ansteigt, wie in Abbildung 5-3 (rechts) dargestellt ist. Dies führt zu einem höheren CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Feed der ersten Trennstufe, sodass die Membranfläche mit steigendem Abtrenngrad über den in Abbildung 5-3 (links) gezeigten Bereich annähernd linear wächst. Bei isolierter Betrachtung eines Membranmoduls steigt mit höherem Abtrenngrad die Membranfläche aufgrund der Abreicherung im Feed stärker als linear an. Für geringe Abtrenngrade in der ersten Trennstufe unter 72 % macht die Rückführung des Retentatstroms der zweiten Trennstufe keinen Sinn, da in diesem Fall der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil der Rückführung unter dem Anteil im Rauchgas liegt. Dies bedeutet, dass der Feedstrom der ersten Trennstufe verdünnt wird und damit einen geringeren CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil als das Rauchgas selbst hat.

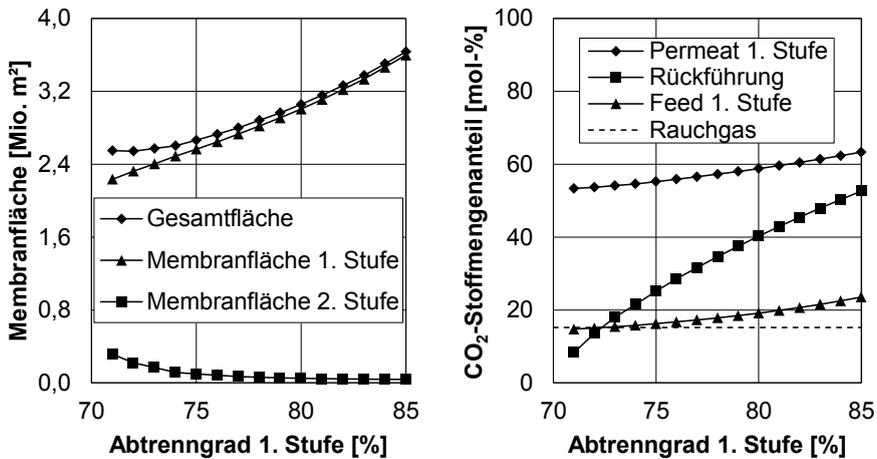


Abbildung 5-3: Membranfläche (links) und CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteile ausgewählter Prozessströme (rechts) in Abhängigkeit des Abtrenngrades in der ersten Trennstufe für einen Prozessabtrenngrad von 70 %

Mit steigendem Abtrenngrad in der ersten Trennstufe erhöht sich auch die insgesamt benötigte Membranfläche, um den Prozessabtrenngrad von 70 % zu erreichen. Dies liegt an der sinkenden Triebkraft für CO<sub>2</sub> in der ersten Trennstufe, je länger die Module in dieser Trennstufe werden. Gleichzeitig reduzieren sich zwar der notwendige Abtrenngrad in der zweiten Trennstufe und damit auch die Membranfläche der zweiten Trennstufe, wie in Abbildung 5-3 (links) veranschaulicht. Diese Reduzierung der Membranfläche in der zweiten Trennstufe kann jedoch die Erhöhung der Membranfläche in der ersten Trennstufe nicht kompensieren.

Die Simulation des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses mit integriertem Referenzmodul – im Folgenden als Referenzfall bezeichnet – ergibt somit, dass in der ersten Trennstufe ein Abtrenngrad von 80 % und in der zweiten Trennstufe von 58,5 % eingestellt werden muss, um das geforderte Trennergebnis – 70 % Prozessabtrenngrad und 95,5 mol-% CO<sub>2</sub>-Reinheit – zu erzielen. Die zugehörigen Längen der Membranmodule in der ersten und zweiten Trennstufe betragen 4,96 m beziehungsweise 1,18 m. Weitere Ergebnisse der Simulation sind in Tabelle 5-1 festgehalten.

Insgesamt wird eine Membranfläche von ca. 3,1 Mio. m<sup>2</sup> benötigt, wobei 3,05 Mio. m<sup>2</sup> auf die erste Trennstufe entfallen und lediglich 50.000 m<sup>2</sup> in den Membranmodulen der zweiten Trennstufe verbaut sind. Damit der Retentatstrom der ersten Trennstufe mit einem Druck, der dem Umgebungsdruck von 1,013 bar entspricht, den Abtrennprozess verlässt, ist der Feedstrom der ersten Trennstufe auf 1,075 bar zu komprimieren. Somit ist der Druckverlust auf der Feedseite von 62 mbar kompensiert. Dies wird in den Prozesssimulationen in Aspen Plus<sup>®</sup> über den Kompressor 1 in Abbildung 2-13 realisiert, wobei im realen Prozess die Leistung des Saugzuges des Kraftwerks erhöht würde. Dies macht bei gleichem Wirkungsgrad der Verdichter-Anlage jedoch keinen energetischen Unterschied, sodass die Leistung des Kompressor 1 von 1,2 MW auch für den Saugzug aufgewandt werden muss.

Für die erste Trennstufe ergeben sich für den Feeddruck von 1,075 bar ein Normvolumenstrom von  $6230 \text{ m}^3(\text{ i.N.})\cdot\text{h}^{-1}$  und ein Stoffmengenstrom von  $278 \text{ kmol}\cdot\text{h}^{-1}$  je Membranmodul. Die erste Trennstufe besteht aus 269 parallel geschalteten Membranmodulen und in der zweiten Trennstufe werden im Referenzfall 18 Module parallel betrieben. In der zweiten Trennstufe beziehungsweise  $23.330 \text{ m}^3(\text{ i.N.})\cdot\text{h}^{-1}$  beziehungsweise  $1040 \text{ kmol}\cdot\text{h}^{-1}$

Tabelle 5-1: Ergebnisse der Simulation des  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses mit integriertem Referenzmodul in beiden Trennstufen

<b>Gesamtprozess</b>			
CO <sub>2</sub> -Abtrenngrad	%	70	
CO <sub>2</sub> -Reinheit des Produktstroms	mol-%	95,5	
Membranfläche	Mio. m <sup>2</sup>	3,1	
Nettoverbrauch	MW	79,92	
Kompressor 1 / Gebläse	MW	1,2	
Kompressor 2	MW	61,31	
CO <sub>2</sub> -Kompressor	MW	27,01	
Expander	MW	-9,6	
Spezifischer Energieverbrauch	kWh·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup>	272	
Wirkungsgradverlust	%-Punkte	6,6	
<b>Trennstufen</b>		<b>1. Trennstufe</b>	<b>2. Trennstufe</b>
CO <sub>2</sub> -Abtrenngrad	%	80	58,5
Membranfläche	Mio. m <sup>2</sup>	3,05	0,05
Anzahl der Kompartimente	-	1	1
Modullänge	m	4,96	1,18
Modulbreite	m	2	2
Modulhöhe	m	2	2
Kanalhöhe Feed	mm	2	2
Kanalhöhe Permeat	mm	1,5	1,5
Membrantaschen je Modul	-	571	571
Parallel geschaltete Membranmodule	-	269	18
Eintrittsgeschwindigkeit	m·s <sup>-1</sup>	1	1
Feeddruck	bar	1,075	4
Druckverlust Feed	mbar	62	26
Permeatdruck	bar	0,15	1
Druckverlust Permeat	mbar	38	24

Die Leistung des Kompressors zwischen der ersten und zweiten Trennstufe – also Kompressor 2 in Abbildung 2-13 – beträgt 61,31 MW, da der Permeatstrom der ersten Trennstufe von ca.  $440.000 \text{ m}^3(\text{ i.N.})\cdot\text{h}^{-1}$  von 0,15 bar auf 4 bar komprimiert werden muss. Dagegen wird für die Kompression des CO<sub>2</sub>-Produktstroms von 1 bar auf 110 bar nur eine Leistung von

27,01 MW benötigt, da der Normvolumenstrom lediglich bei  $162.600 \text{ m}^3(\text{ i.N.})\cdot\text{h}^{-1}$  liegt. Durch den Druckverlust in den Feedkanälen der zweiten Trennstufe von 26 mbar liegt der Retentatdruck dieser Trennstufe bei 3,974 bar. Durch die Expansion des rückgeführten Stroms auf den Feeddruck der ersten Trennstufe von 1,075 bar kann eine Leistung von 9,6 MW zurückgewonnen werden, sodass der Nettoverbrauch des  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses für den Referenzfall bei 79,92 MW liegt. Dies ergibt einen Wirkungsgradverlust durch die  $\text{CO}_2$ -Abtrennung von 6,6 %-Punkten. Zur Abtrennung und Kompression auf 110 bar von einer Tonne  $\text{CO}_2$  beträgt der Energieverbrauch 272 kWh beziehungsweise ca. 1 GJ. Die Druckverluste im Permeat in Höhe von 38 mbar in der ersten Trennstufe und 24 mbar in der zweiten Trennstufe haben keine Auswirkungen auf die Druckverhältnisse in den Kompressoren. Innerhalb des Membranmoduls fällt der Permeatdruck vom Modulende zum Modulanfang jeweils um diesen Betrag ab, sodass der Druck am Austritt 0,15 bar beziehungsweise 1 bar beträgt. Der Druck in den Permeatkanälen liegt somit über dem Austrittsdruck, sodass die Triebkraft im Membranmodul gemindert wird.

Diese Triebkraftminderung durch den Druckverlust – aber auch durch die Konzentrationspolarisation – hat den in Abbildung 5-4 dargestellten Einfluss auf die Abtrennperformance. Bei der Simulation des Referenzfalls wird die Modellierung der Konzentrationspolarisation nach Melin [18, S. 147] verwendet. Dies ist damit begründet, dass ein Vergleich zwischen der Modellierung der Konzentrationspolarisation nach Da Costa [50] und Melin ergibt, dass die konservativere Abschätzung der Abtrennperformance mit der Modellierung nach Melin erreicht wird. Die relative Differenz des  $\text{CO}_2$ -Partialdruckes in der Hauptströmung und an der Membranoberfläche der Feedseite beträgt mit Modellierung nach Da Costa maximal lediglich 0,01 % und ist somit vernachlässigbar gering. Dagegen ergibt sich unter Verwendung der Sherwood-Korrelation nach Melin eine Abweichung des  $\text{CO}_2$ -Partialdruckes um ca. 1 %. Diese Abweichung gilt bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , bei der der Einfluss der Konzentrationspolarisation durch den verbesserten Stoffübergang in der Konzentrationsgrenzschicht gemindert ist. Für die weitere Auslegung, bei der sich auch geringere Geschwindigkeiten einstellen, vergrößert sich die triebkraftmindernde Wirkung der Konzentrationspolarisation, sodass sie im Folgenden nicht vernachlässigt wird.

Sowohl die Membranfläche als auch der Nettoverbrauch sind mit Modellierung der Konzentrationspolarisation nach Da Costa und ohne Berücksichtigung der Konzentrationspolarisation annähernd gleich groß. Dagegen weichen die Membranfläche um 2,8 % und der Nettoverbrauch um 1,5 % im Vergleich zur Vernachlässigung der Konzentrationspolarisation nach oben ab, wenn die Sherwood-Korrelation von Melin in der Modellierung genutzt wird. Allerdings dominiert für die Eintrittsgeschwindigkeit von  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  die Triebkraftminderung durch den Druckverlust. Ohne Berücksichtigung des Druckverlustes und der Konzentrationspolarisation ist die für das gleiche Trennergebnis benötigte Membranfläche im Vergleich zum Referenzfall um ca. 23 % kleiner und liegt nur bei ca. 2,4 Mio.  $\text{m}^2$ . Gleichzeitig wird der Nettoverbrauch um 8,7 MW beziehungsweise 11 % unterschätzt, wenn beide triebkraftmindernden Effekte vernachlässigt werden.

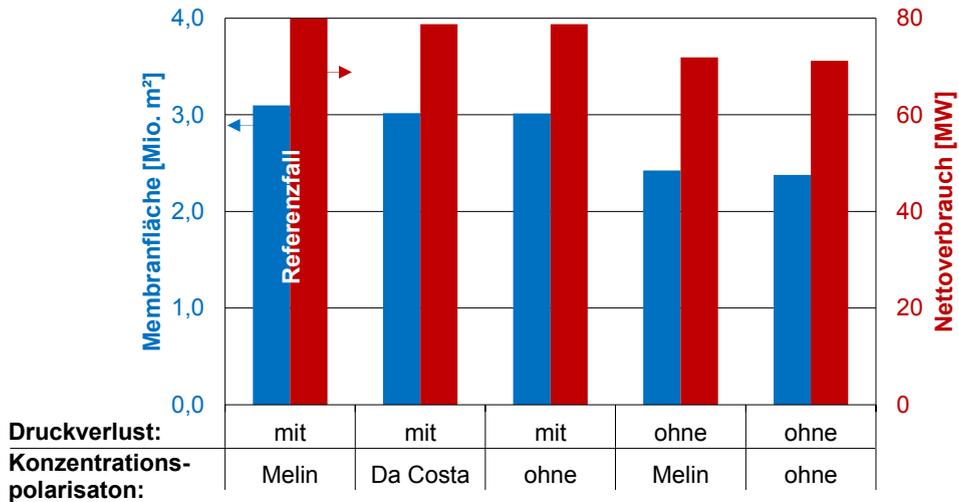


Abbildung 5-4: Vergleich von Membranfläche und Nettoverbrauch des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses mit und ohne Druckverlust sowie mit und ohne Modellierung der Konzentrationspolarisation; Konzentrationspolarisation modelliert mit Sherwood-Korrelationen nach Melin [18, S. 147] und Da Costa [50]

### 5.2.3 CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten mit integriertem Referenzmodul

Im Folgenden werden die für den Betrieb des Kraftwerks und für den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess charakteristischen Kosten unter Annahme des in Kapitel 5.2.2 beschriebenen Referenzfalls bestimmt. Für den Kraftwerksbetrieb sind dies die Stromgestehungskosten und für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung sind dies die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten. Zur Ermittlung dieser Kosten werden zunächst die Investitionssummen der Teilanlagen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses über ihre jeweilige Kapazitätsgröße gemäß Kapitel 3.5 berechnet, die in Tabelle 5-2 angegeben sind.

Tabelle 5-2: Investitionssummen der Teilanlagen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses für den Referenzfall

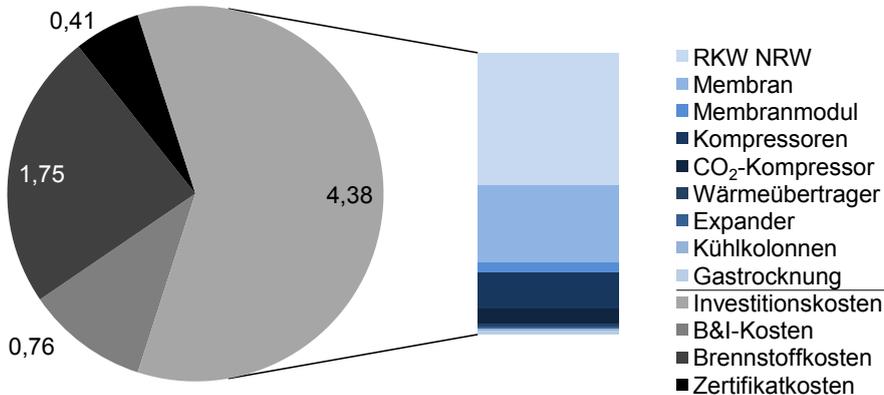
Teilanlage	Investitionssumme [Mio. €]
Membran	155
Membranmodule	53
Kompressoren / Vakuumpumpen	182
CO <sub>2</sub> -Kompressor	79
Wärmeübertrager	14
Expander	13
Kühlkolonnen	7
Gastrocknung	20
<b>Gesamte Investitionssumme</b>	<b>523</b>

Für die Membrantaschen ergibt sich bei einer Membranfläche im Referenzfall von 3,1 Mio. m<sup>2</sup> eine Investitionssumme von 155 Mio. €. Diese Summe fällt alle fünf Jahre als Ausgaben an, da die Membranen alle fünf Jahre erneuert werden müssen. Für alle anderen Bauteile wird angenommen, dass sie über die Lebensdauer des Kraftwerks von 35 Jahren nicht vollständig ersetzt werden, sondern lediglich Kosten für die Instandhaltung dieser Bauteile anfallen. Die Gehäuse der Membranmodule ohne Membran kosten 53 Mio. €. Ungefähr 50 % der gesamten Investitionssumme von 523 Mio. € wird für die Kompressoren und Vakuumpumpen im Abtrennprozess sowie für den CO<sub>2</sub>-Kompressor für die Verdichtung auf 110 bar aufgewandt. Davon fallen 182 Mio. € im Abtrennprozess und weitere 79 Mio. € für die Verdichtung des Produktstroms an. Die Investitionssumme für die Wärmeübertrager zur Vorwärmung des Retentatstroms der zweiten Trennstufe vor den Expandern beträgt 14 Mio. €, für die Expander selbst beträgt sie 13 Mio. €. Zur Kühlung des Rauchgasstroms auf 25 °C dienen zwei parallel geschaltete Kühlwäschen, die als Packungskolonne mit 4 Packungseinheiten ausgeführt sind. Jede Packung ist 2,5 m hoch und hat einen Durchmesser von 8 m, sodass sich ein packungsbesetztes Kolonnenvolumen von ca. 500 m<sup>3</sup> ergibt. Damit kosten die Kühlkolonnen inklusive Packungen ca. 7 Mio. €. Da die Ausgestaltung der Gastrocknung zurzeit noch nicht bekannt ist, wird für die hierfür notwendigen Anlagen eine Investitionssumme von ca. 20 Mio. € angenommen. Zudem wird die Investitionssumme des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen der Investitionssumme der Teilanlagen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses hinzugerechnet. Die Investitionssumme in Höhe von 517 Mio. € gilt für das Jahr 2004 und wird mittels des in Kapitel 3.5.1 vorgestellten CEPCI auf das Jahr 2012 – dem Basisjahr für die Kostenberechnung in der vorliegenden Arbeit – umgerechnet, sodass sich ein Wert von 680 Mio. € ergibt.

Zusammen mit den jährlichen Ausgaben für die variablen Betriebskosten – also die Betriebs- und Instandhaltungskosten, die Brennstoffkosten und die Zertifikatkosten – ergeben sich für den Referenzfall Stromgestehungskosten gemäß Gl. 3-52 in Höhe von 7,3 ct·kWh<sup>-1</sup>. Die Zertifikatkosten fallen für die 30 % des CO<sub>2</sub> des Rauchgases an, die nicht im CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess abgetrennt werden und diesen Prozess am Retentataustritt der ersten Trennstufe verlassen. Die Aufteilung der Stromgestehungskosten auf die einzelnen Ausgabenarten ist in Abbildung 5-5 dargestellt.

Während die Brennstoffkosten 1,75 ct·kWh<sup>-1</sup> beziehungsweise 24 % der SGK ausmachen, liegt der Anteil der Investitionskosten bei knapp 60 % oder 4,38 ct·kWh<sup>-1</sup>. Die Summe der Ausgaben für die Beschaffung des Brennstoffes übersteigt die Investitionssumme des RKW NRW mit angehängtem CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess. Da diese Ausgaben jedoch mit dem kalkulatorischen Zinssatz von 10 % auf das Jahr null diskontiert werden und die Investitionssumme im Jahr null anfällt, ist der Anteil der Brennstoffkosten an den SGK im Vergleich zu den Investitionskosten geringer. Innerhalb der Investitionskosten macht der eigentliche Kraftwerksprozess ungefähr die Hälfte der diskontierten Ausgaben aus. Die Membranen fallen stärker ins Gewicht als die Kompressoren, da sie wiederkehrende Ausgaben durch Neuanschaffungen alle fünf Jahre verursachen. Bei einem CO<sub>2</sub>-Zertifikatpreis von anfänglich 7 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> haben die Zertifikatkosten einen Anteil von lediglich 5,7 % an den SGK. Steigt der Zertifikatpreis nicht um 1 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup> sondern um 2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, machen die Zahlungen zum Erwerb von Emissionsrechten 8,6 % der gesamten Stromgestehungskosten aus.

Stromgestehungskosten: 7,3 ct·kWh<sup>-1</sup> (RKW NRW: 4,75 ct·kWh<sup>-1</sup>)



RKW NRW: Referenzkraftwerk Nordrheinwestfalen

B&I-Kosten: Betriebs- und Instandhaltungskosten

Abbildung 5-5: Zusammensetzung der Stromgestehungskosten aus Investitionskosten, Betriebs- und Instandhaltungskosten, Brennstoffkosten und Zertifikatkosten sowie Aufschlüsselung der Investitionskosten auf die Anlagen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses und das Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen; Angaben in ct·kWh<sup>-1</sup>

Die Aufteilung der Stromgestehungskosten des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen auf die einzelnen Kostenbestandteile ist im Anhang 8.10 in Abbildung 8-9 dargestellt. Ohne den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess hat das Kraftwerk die gleiche thermische Leistung und somit die gleichen absoluten Brennstoffkosten. Durch den höheren Nettowirkungsgrad steigt gleichzeitig jedoch die jährlich produzierte Energiemenge, sodass die spezifischen Brennstoffkosten mit 1,49 ct·kWh<sup>-1</sup> geringer sind als im Fall mit angehängtem CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess. Allerdings haben sie einen höheren Anteil an den SGK von ca. 31 %. Gleichzeitig sinkt der Anteil der Investitionskosten an den SGK auf 37 % ohne die wiederkehrend anfallenden Investitionssummen für die Bauteile des Abtrennprozesses. Dafür erhöhen sich die Ausgaben zum Erwerb der CO<sub>2</sub>-Zertifikate, da 100 % des bei der Verbrennung produzierten CO<sub>2</sub> auch emittiert werden. Somit entfallen 25 % beziehungsweise 1,19 ct·kWh<sup>-1</sup> der SGK auf diese Ausgaben statt 5,7 % beziehungsweise 0,41 ct·kWh<sup>-1</sup> für den Fall, dass 70 % des CO<sub>2</sub> abgetrennt werden. Insgesamt ergeben sich für das RKW NRW Stromgestehungskosten in Höhe von 4,75 ct·kWh<sup>-1</sup>. Somit steigen die SGK um 2,55 ct·kWh<sup>-1</sup>, wenn der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess dem konventionellen Kraftwerksprozess angehängt wird.

Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten geben an, wie hoch die zusätzlichen Kosten sind, wenn das produzierte CO<sub>2</sub> nicht emittiert wird, sondern abgetrennt wird. Da für das abgetrennte CO<sub>2</sub> keine Zertifikatkosten anfallen, werden die Stromgestehungskosten ohne Berücksichtigung der Zertifikatkosten berechnet. So ergeben sich Stromgestehungskosten für das RKW NRW von 3,6 ct·kWh<sup>-1</sup> und für das Kraftwerk mit CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess von 6,9 ct·kWh<sup>-1</sup>, sodass die Differenz bei 3,3 ct·kWh<sup>-1</sup> liegt. Dies sind die Kosten, die zusätzlich anfallen, um eine Kilowattstunde Strom zu generieren, wenn 70 % des produzierten CO<sub>2</sub> abgetrennt werden. Wird diese Differenz auf die vermiedenen CO<sub>2</sub>-Emissionen je Kilowattstunde bezogen, erhält man

die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten. Bei einem CO<sub>2</sub>-Vermeidungsgrad von 65 % für den Referenzfall wird die Emission von 0,49 kg<sub>CO<sub>2</sub></sub>·kWh<sup>-1</sup> der produzierten 0,76 kg<sub>CO<sub>2</sub></sub>·kWh<sup>-1</sup> vermieden. Somit liegen die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten bei ca. 68 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>.

Die berechneten Stromgestehungskosten und CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten gelten für den Kraftwerksprozess inklusive nachgeschaltetem CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess mit dem Referenzmodul. Abweichungen in den hier getroffenen Annahmen und Auslegungsparametern beispielsweise aufgrund anderer systemexterner Faktoren verändern das Ergebnis zum Teil erheblich. Für die Optimierung der Modulgeometrien hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten sind diejenigen Stellhebel zu identifizieren, die die größte Veränderung in den Kosten bewirken, da es sich am meisten lohnt, diese zu variieren und optimieren. Doch auch die Sensitivität der Kosten gegenüber anderen Annahmen des Kostenmodells geben Aufschluss über die Bandbreite, in der die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten liegen können. Um diese Sensitivitäten zu quantifizieren, wird eine Tornadoanalyse durchgeführt. Hierbei wird jeweils ein Modellparameter um 20 % nach oben und unten von seinem Standardwert beziehungsweise Wert bei Auslegung des Referenzfalls variiert. Mit diesem geänderten Parameter werden die Stromgestehungskosten und CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten bestimmt. Für die Stromgestehungskosten ist das Tornado-Diagramm in Abbildung 5-6 dargestellt.

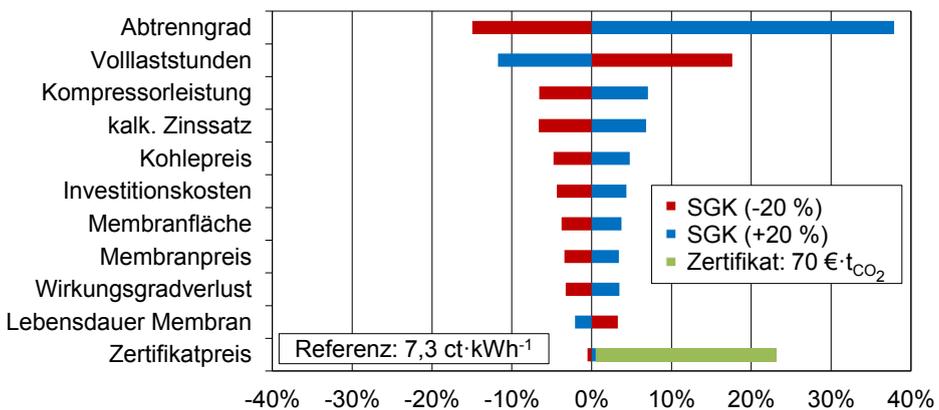


Abbildung 5-6: Veränderung der Stromgestehungskosten (SGK) bei Variation wichtiger, angenommener Parameter um ±20 % ausgehend von SGK im Referenzfall von 7,3 ct·kWh<sup>-1</sup> sowie Veränderung der SGK durch eine Änderung des CO<sub>2</sub>-Zertifikatpreises im Jahr der Inbetriebnahme auf 70 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>

Der Abtrenngrad hat den größten Einfluss auf die Stromgestehungskosten. Wird er um 20 % auf 84 % erhöht, steigen die SGK um ca. 38 % auf 10,1 ct·kWh<sup>-1</sup>. Wird der Abtrenngrad dagegen um 20 % auf 56 % gesenkt, sinken die SGK um ca. 15 % auf 6,2 ct·kWh<sup>-1</sup>. Dies zeigt, dass die Grenzkosten zur Abtrennung einer weiteren Einheit CO<sub>2</sub> für höhere Abtrenngrade immer größer werden, da jede weitere Tonne CO<sub>2</sub> aufgrund der sinkenden Triebkraft schwieriger abzutrennen ist. Weitere wichtige Einflussgrößen auf die Stromgestehungskosten sind die jährlichen Volllaststunden mit denen das Kraftwerk betrieben wird und der für die Berechnung angenommene kalkulatorische Zinssatz. Seitens des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses verspricht die Reduzierung der Kompressorleistung das größte Einsparpotential. Hierdurch wird nicht nur der Wirkungsgrad gesteigert, sondern gleichzeitig auch die Investitionssumme der Verdichteranlagen reduziert. Bei Verringerung dieser Kompressorleistung um 20 % nehmen

die SGK um 6,8 % auf  $6,8 \text{ ct} \cdot \text{kWh}^{-1}$  ab. Eine isolierte Änderung des Wirkungsgradverlustes um 20 % bei gleichen installierten Kompressoren hat einen geringeren Effekt, da eine Variation der Kompressorleistung sowohl durch Änderung der produzierten Energiemenge als auch durch Änderung der Investitionssumme die SGK beeinflusst. Wird durch Optimierungsmaßnahmen am Membranmodul die Membranfläche um 20 % reduziert, sinken damit die SGK um 3,8 %. Es ist also entscheidender den Nettoverbrauch des Abtrennprozesses zu reduzieren als die Membranfläche zu senken. Da die Zertifikatkosten nur 5,6 % der SGK ausmachen, bewirkt eine Variation des Zertifikatpreises kaum Änderungen in den SGK. Allerdings ist zu beachten, dass für das Jahr der Inbetriebnahme ein niedriger Zertifikatpreis von  $7 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  angenommen wird. Würde dieser nicht um 20 % erhöht, sondern bei  $70 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  liegen, würden die Stromgestehungskosten um ca. 23 % auf  $9 \text{ ct} \cdot \text{kWh}^{-1}$  ansteigen.

Die Sensitivität der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten bei Änderung der Prozessparameter um 20 % ist in Abbildung 5-7 dargestellt. Es ergibt sich eine ähnliche Rangfolge des Einflusses einzelner Parameter wie bei den Stromgestehungskosten. Diejenigen Faktoren, die sowohl Auswirkungen auf die SGK des Kraftwerks ohne  $\text{CO}_2$ -Abtrennung als auch auf die SGK des Kraftwerks mit CCUS haben, verlieren an Einfluss. Dies sind besonders der kalkulatorische Zinssatz und der Kohlepreis. Die Volllaststunden haben dagegen nach wie vor ein starkes Gewicht in der Berechnung der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten, da sie die variablen Kosten beeinflussen und der Anteil der fixen Investitionssumme des Abtrennprozesses an den Kosten bei niedrigeren Volllaststunden wächst. Die Parameter des Abtrennprozesses gewinnen an Bedeutung, da die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten die durch die Abtrennung zusätzlich anfallenden Kosten beziffern. Vor allem der Abtrenngrad beeinflusst die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten. Für einen Abtrenngrad von 84 % statt 70 % liegen die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten um 54 % höher als im Referenzfall und damit bei ca.  $105 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Wird durch optimierte Bedingungen im Abtrennprozess die Kompressorleistung oder die Membranfläche um 20 % gesenkt, verringern sich die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten um 15,6 % beziehungsweise 8,3 %. Eine Reduzierung des Membranpreises und eine Erhöhung der Membranlebensdauer haben eine ähnliche Auswirkung auf die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten wie die Verringerung der Membranfläche. Für die Materialforschung lohnt es sich also, neben dem Ziel, die  $\text{CO}_2$ -Permeanz zu erhöhen, auch die Lebensdauer zu vergrößern und die Herstellkosten der Membran zu senken.

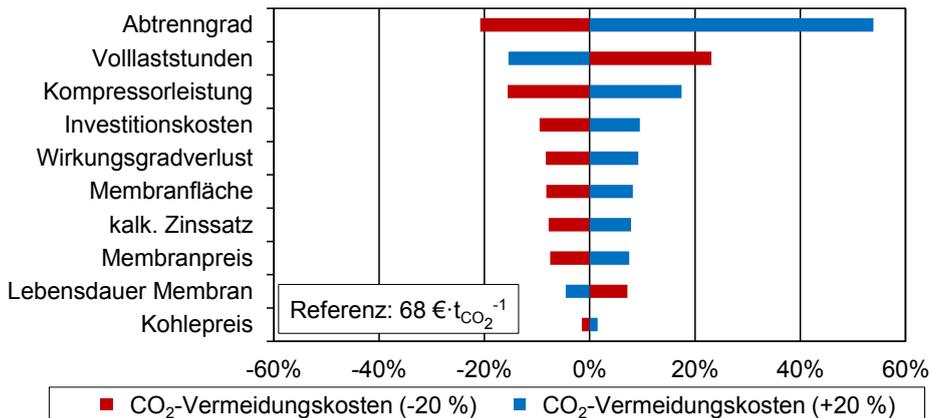


Abbildung 5-7: Prozentuale Veränderung der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten bei Variation von Prozessparametern um  $\pm 20\%$  ausgehend von  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten im Referenzfall von  $68 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$

### 5.3 Ermittlung der optimierten Eintrittsgeschwindigkeiten

Ausgehend von den Kosten im Referenzfall werden nun, beginnend mit der Variation der Strömungsgeschwindigkeiten, die Membranmodule wirtschaftlich optimiert ausgelegt. Eine erhöhte Strömungsgeschwindigkeit verbessert nach Gl. 3-23 den Stoffübergang und reduziert damit die Konzentrationsüberhöhung der zurückgehaltenen Komponente auf der Feedseite. Gleichzeitig steigt mit erhöhter Geschwindigkeit der Druckverlust je Meter Modullänge, sodass die Abtrennperformance des Moduls sinkt. Dies ist bei der Wahl der Eintrittsgeschwindigkeit und damit der Wahl des Feed-Volumenstroms bei gegebenem durchströmten Querschnitt zu beachten. Es existiert eine optimale Eintrittsgeschwindigkeit. Zunächst wird in Kapitel 5.3.1 für beide Trennstufen die maximal tolerierbare Eintrittsgeschwindigkeit ermittelt, bei der am Modulende noch eine positive Triebkraft für  $\text{CO}_2$  herrscht. Die optimale Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kanalhöhen wird für beide Trennstufen in Kapitel 5.3.2 bestimmt. Dabei werden die Trennstufen losgelöst vom Gesamtprozess optimiert. Die Optimierung der Eintrittsgeschwindigkeit der in den Abtrennprozess integrierten Membranmodule wird in Kapitel 5.3.3 vorgestellt.

#### 5.3.1 Maximal tolerierbare Eintrittsgeschwindigkeit

Die maximal möglichen Abtrenngrade für die erste Trennstufe bei gegebener Eintrittsgeschwindigkeit zeigt Abbildung 5-8.

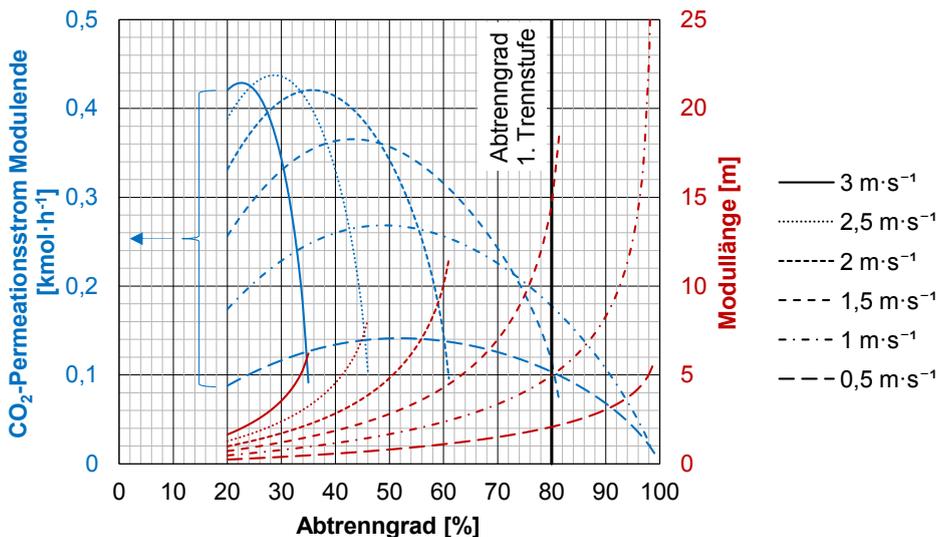


Abbildung 5-8:  $\text{CO}_2$ -Permeationsstrom am Modulende der ersten Trennstufe und zugehörige Modullänge bei variablem Abtrenngrad für Eintrittsgeschwindigkeiten von  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $2,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$

Aufgetragen ist der  $\text{CO}_2$ -Permeationsstrom am Modulende – also in der letzten Zelle des gemäß Abbildung 3-1 diskretisierten Modells des Membranmoduls in Aspen Custom Modeler® – über den Abtrenngrad für verschiedene Eintrittsgeschwindigkeiten. Weiterhin wird die zugehörige Modullänge zum Erreichen dieses Abtrenngrades bei einer Modulbreite von 2 m

dargestellt. In der ersten Trennstufe wird ein Druckverhältnis von 1 bar im Feed zu 0,15 bar im Permeat angenommen. Der Abtrenngrad wird als Zielgröße vorgegeben und variiert. Die Variation fängt bei einem Abtrenngrad von 20 % an und geht bis zu einem Abtrenngrad, bei dem am Ende des Moduls gerade noch eine positive Triebkraft zur Permeation des CO<sub>2</sub> durch die Membran herrscht. Dies ist der maximal erreichbare CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad für die jeweilige Eintrittsgeschwindigkeit. Höhere Abtrenngrade sind nicht möglich, da der Druckverlust im Feed und Permeat bei längeren Modulen so hoch ist und das CO<sub>2</sub> im Feed so stark verarmt, dass der CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Permeat größer als der CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Feed wird und es damit zu einer Rückdiffusion kommt. Daher ist mit der Modullänge bei maximalem Abtrenngrad gleichzeitig die maximale Modullänge mit positiver Triebkraft dargestellt.

Mit länger werdendem Modul und gleicher Zellanzahl von 50 Zellen für die Modellierung des Moduls in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup> wird auch die Membranfläche je Zelle größer. Gleichzeitig sinkt die Triebkraft in der letzten Zelle mit steigender Modullänge. Dieser gegenläufige Effekt ist in Abbildung 5-8 dadurch zu erkennen, dass die Graphen für die CO<sub>2</sub>-Permeation am Modulende anfangs ansteigen und ab einem gewissen Abtrenngrad sinken. Anfangs trägt die größer werdende Membranfläche zu einer höheren CO<sub>2</sub>-Permeation bei. Danach wirkt die Triebkraftminderung am Modulende stärker auf die Permeation ein.

Für die untersuchten Eintrittsgeschwindigkeiten ergeben sich unterschiedliche maximale Abtrenngrade. Der maximal erreichbare Abtrenngrad der ersten Trennstufe liegt bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von 3 m·s<sup>-1</sup> bei ca. 35 % und steigt für geringere Eintrittsgeschwindigkeiten auf bis zu 99 % für 0,5 m·s<sup>-1</sup>. Gemäß der Dimensionierung der ersten Trennstufe in Kapitel 5.2.2 liegt der Abtrenngrad der ersten Trennstufe bei ca. 80 %, um einen Prozessabtrenngrad von 70 % bei einer CO<sub>2</sub>-Reinheit des Produktstroms von 95,5 mol-% zu erreichen. Dazu darf die Eintrittsgeschwindigkeit bei maximal 1,5 m·s<sup>-1</sup> liegen, da aufgrund der hohen Druckverluste sonst die Triebkraft für diesen Abtrenngrad von 80 % in der ersten Trennstufe nicht mehr reicht.

Je niedriger die Eintrittsgeschwindigkeit in den Membranstapel ist, desto geringer ist der Volumenstrom je Modul. Dadurch muss je Modul weniger CO<sub>2</sub> durch die Membranen permeieren, um den Abtrenngrad von 80 % in der ersten Trennstufe zu erreichen, sodass die Module kürzer gebaut werden können. Zusätzlich verkürzen sich die Module, da der Druckverlust bei niedrigen Geschwindigkeiten geringer ist und somit bis zu einer Geschwindigkeit, ab welcher der Einfluss der Konzentrationspolarisation zunimmt, eine bessere durchschnittliche Triebkraft herrscht. Zwar müssen aufgrund des niedrigeren Stoffmengenstroms je Modul mehr Membranmodule parallel geschaltet werden, aber die gesamte benötigte Membranfläche zum Erreichen des Abtrenngrades von 80 % in der ersten Trennstufe sinkt dennoch mit kleineren Geschwindigkeiten. Während für den Abtrenngrad von 80 % bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von 1,5 m·s<sup>-1</sup> ein Modul ca. 14,6 m lang ist und eine gesamte Membranfläche von knapp 6 Mio. m<sup>2</sup> benötigt wird, verringert sich die Modullänge für eine Eintrittsgeschwindigkeit von 0,5 m·s<sup>-1</sup> auf ca. 2 m bei einer gesamten Membranfläche von nur 2,55 Mio. m<sup>2</sup>.

Die Variation der Eintrittsgeschwindigkeit hat auch Auswirkungen auf die maximale Modullänge, bei der noch eine positive Triebkraft in Richtung Permeat herrscht. Sinkt die Eintrittsgeschwindigkeit von 3 m·s<sup>-1</sup> auf 1 m·s<sup>-1</sup>, steigt diese Länge von ca. 6 m auf ca. 25 m an. Dies liegt an den reduzierten Druckverlusten bei niedrigeren Überströmungsgeschwindigkeiten. Bei einer weiteren Senkung der Eintrittsgeschwindigkeit auf 0,5 m·s<sup>-1</sup> liegt die maximale Modullänge, bei der noch eine Triebkraft in Richtung Permeat herrscht, bei lediglich 5,5 m und ist damit wieder kleiner als für höhere Geschwindigkeiten. Dies ist damit begründet, dass

sich durch den hohen Abtrenngrad der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Feed so sehr verringert, dass er die Triebkraft schmälert.

Die gleiche Analyse zum maximal erreichbaren Abtrenngrad ergibt für die zweite Trennstufe ein anderes Ergebnis, welches in Abbildung 8-10 im Anhang 8.10 dargestellt ist. Der hohe  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Feedeintritt von ca. 2,4 bar in Kombination mit einem  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Permeataustritt von 0,92 bar sorgt für eine hohe Permeationsrate am Modulanfang. Weiterhin ist aufgrund der großen Partialdruckdifferenz von ca. 1,5 bar am Modulanfang auch bei starkem Druckabfall entlang eines Feedkanals noch eine positive Triebkraft am Modulende gewährleistet. Daher können auch mit einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  Abtrenngrade von mehr als 90 % erzielt werden, wobei die Membranmodule in diesem Fall theoretisch länger als 30 m sein können. Bei Abtrenngraden von 99 % sinkt unter der Annahme einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil auf der Feedseite auf ca. 4,4 mol-%. Damit herrscht am Modulende nur noch eine geringe Triebkraft, sodass die Modulängen stark ansteigen, um die letzten Prozentpunkte des Abtrenngrades zu realisieren. Der in der zweiten Trennstufe geforderte Abtrenngrad von ca. 58,5 % wird sogar mit einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  erreicht. Für diesen Abtrenngrad liegen die Modulängen zwischen 0,6 m für eine Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und 6 m für  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

### 5.3.2 Variation der Kanalhöhe

Die Abtrennperformance hängt jedoch nicht nur vom Druckverlust auf der Feedseite ab, sondern auch der Druckverlust auf der Permeatseite spielt eine wichtige Rolle. Hinzu kommt die Triebkraftminderung aufgrund der Konzentrationspolarisation auf der Feed- und Permeatseite. Beide triebkraftmindernden Effekte können durch Variation der Kanalhöhen gesteuert werden. Es werden die hydraulischen Durchmesser der Kanäle und die Geschwindigkeit im Permeat beeinflusst, sodass auch in den Permeatkanälen eine optimierte Geschwindigkeit eingestellt wird. Wie in Abbildung 5-9 dargestellt, hat eine Veränderung der Höhen der Feed- und Permeatkanäle bei gleichbleibender Modulhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit Auswirkungen auf den Volumenstrom je Modul und auf die Membranfläche pro Meter Modulänge.

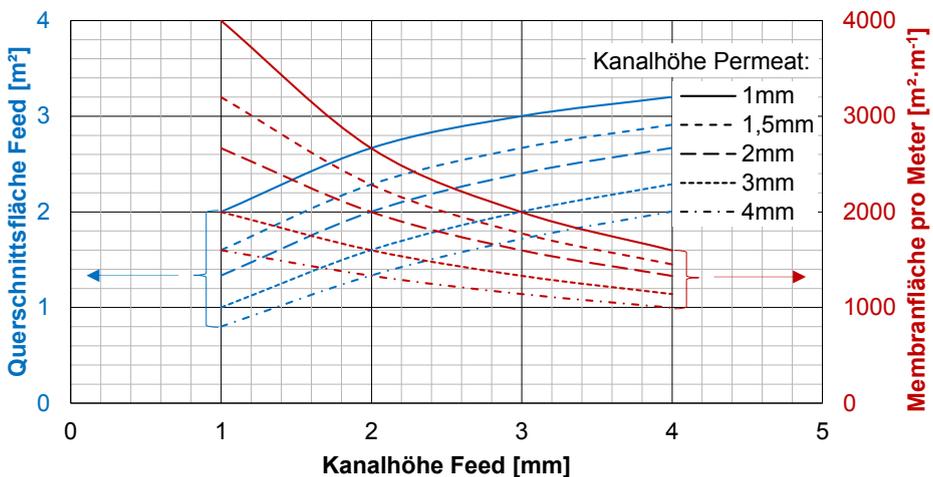


Abbildung 5-9: Querschnittsfläche der Feedkanäle und Membranfläche je Meter Modulänge bei einer Gesamthöhe und -breite des Membranmoduls von 2 m für verschiedene Kanalhöhen im Feed und Permeat

Je kleiner die Höhe des Feedkanals bei gleichbleibender Höhe des Permeatkanals und gleicher Modulhöhe ist, desto geringer ist der Volumenstrom je Membranmodul und desto mehr Membranfläche je Meter Modullänge steht für die Abtrennung zur Verfügung. Das gleiche Verhalten ist bei steigenden Kanalhöhen im Permeat zu beobachten, wenn die Kanalhöhe im Feed und die Modulhöhe konstant gehalten werden. Gleichzeitig sinkt die Strömungsgeschwindigkeit im Permeatkanal, je höher dieser ist und je geringer die Permeationsrate je Membrantasche ist.

Somit existiert ein optimiertes Verhältnis der Kanalhöhen, sodass die Triebkraftminderung durch Druckverlust und Konzentrationspolarisation auf der Feed- und Permeatseite insgesamt verringert wird. Dieses Verhältnis kann für die erste Trennstufe aus Abbildung 5-10 abgelesen werden. Für verschiedene Kombinationen aus Kanalhöhen ist die spezifische Membranfläche – also die Membranfläche je Tonne in der ersten Trennstufe abgetrenntes CO<sub>2</sub> pro Stunde – in Abhängigkeit der Eintrittsgeschwindigkeit aufgetragen. Die spezifische Membranfläche wird als Kriterium gewählt, da mit steigender Eintrittsgeschwindigkeit auch der Massenstrom je Modul ansteigt. Damit benötigt ein Modul eine größere Fläche, um den erforderlichen Abtrenngrad von ca. 80 % in der ersten Trennstufe zu erzielen. Gleichzeitig werden insgesamt weniger Membranmodule benötigt, da je Modul ein größerer Anteil des gesamten Rauchgasstroms behandelt werden kann.

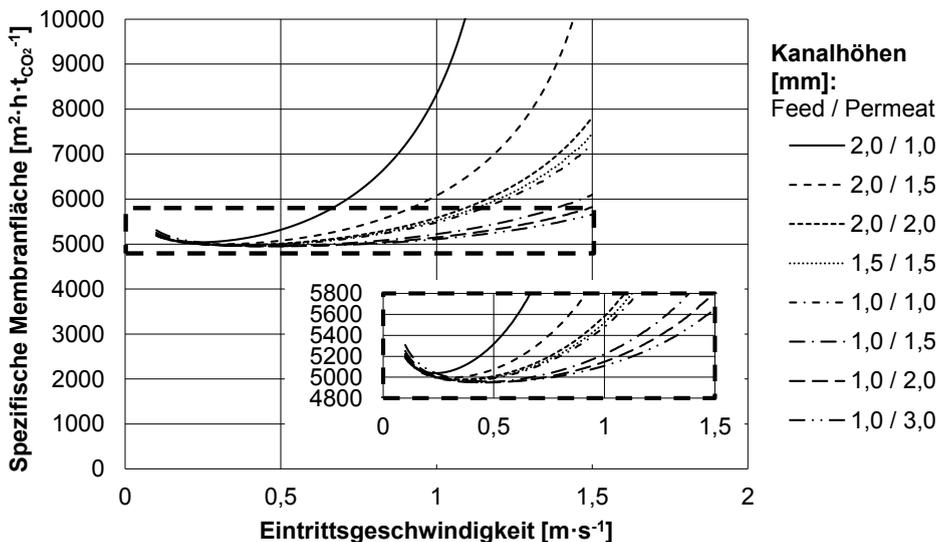


Abbildung 5-10: Spezifische Membranfläche je Tonne permeiertes CO<sub>2</sub> in der ersten Trennstufe bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kombinationen von Kanalhöhen im Feed und Permeat

Der prinzipielle Verlauf der Graphen ist für jede Kanalhöhenkombination gleich. Für kleine Eintrittsgeschwindigkeiten überwiegt die Triebkraftminderung durch Konzentrationspolarisation, sodass die spezifische Membranfläche ansteigt. Kleine Geschwindigkeiten bedeuten einen schlechteren Stoffübergang in der Konzentrationsgrenzschicht, sodass die diffusiven Ausgleichsströme zur Minderung der Konzentration der zurückgehaltenen Komponente an der Membranoberfläche kleiner werden. Bei höheren Geschwindigkeiten sorgt der hohe

Druckverlust für eine Minderung der durchschnittlichen Triebkraft, wodurch die spezifische Membranfläche ansteigt. Damit existiert für jede Kanalhöhenkombination eine optimale Eintrittsgeschwindigkeit, bei der die spezifische Membranfläche für diesen Auslegungsfall minimal wird. Diese liegt zwischen  $0,24 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für Kanalhöhen von 2 mm und 1 mm im Feed beziehungsweise Permeat und  $0,51 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für Kanalhöhen von 1 mm und 3 mm im Feed beziehungsweise Permeat. Werden die Kanalhöhen des Referenzfalls beibehalten, liegt die optimale Eintrittsgeschwindigkeit bei  $0,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Je größer das Verhältnis von Feed- zu Permeatkanalhöhe, desto niedriger ist die optimale Eintrittsgeschwindigkeit.

Die spezifischen Membranflächen bei den optimalen Geschwindigkeiten liegen zwischen  $4950 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  für Kanalhöhen von 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat und  $5040 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  für Kanalhöhen von 2 mm im Feed und 1 mm im Permeat. Für die Kanalhöhen des Referenzfalls ergibt sich eine spezifische Membranfläche von  $5000 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Bei den jeweils optimalen Geschwindigkeiten bestehen somit keine großen Unterschiede in der spezifischen Membranfläche. Allerdings ist nicht die Kanalhöhenkombination optimal, bei der der Permeatkanal mit 3 mm am größten ist. Eine Kanalhöhe von 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat ergibt eine um  $7,4 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  niedrigere spezifische Membranfläche als ein Verhältnis von 1 mm zu 3 mm. Je kleiner die spezifische Membranfläche bei der jeweils optimalen Eintrittsgeschwindigkeit ist, desto höher ist der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat. Dies wirkt sich positiv auf die Triebkraft der zweiten Trennstufe aus.

Bei Abweichung von der optimalen Eintrittsgeschwindigkeit zu höheren Eintrittsgeschwindigkeiten ergeben sich jedoch zum Teil große Unterschiede in der spezifischen Membranfläche je nach Kanalhöhenkombination. Sind die Permeatkanäle höher als die Feedkanäle, sind die Minima der Graphen relativ flach. Daher weicht die spezifische Membranfläche auch bei Eintrittsgeschwindigkeiten von  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , die ungefähr doppelt so hoch wie die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten sind, nur um ca.  $200 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  von der minimalen spezifischen Membranfläche ab. Im Umkehrschluss bedeutet dies, dass sich bei leichten Schwankungen des Rauchgasvolumenstroms der Abtrenngrad nicht wesentlich ändert, da sich die Abtrennperformance bei Abweichung vom Auslegungs- beziehungsweise optimierten Betriebspunkt kaum ändert. Bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  liegt der Unterschied zum optimalen Betriebspunkt jedoch schon bei  $700 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  bis  $1150 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  für die Fälle mit höheren Permeat- als Feedkanalhöhen. Sind die Feedkanäle höher als die Permeatkanäle, ergeben sich extreme Unterschiede zwischen der spezifischen Membranfläche bei optimaler Eintrittsgeschwindigkeit und höheren Eintrittsgeschwindigkeiten. Beispielsweise wird für Kanalhöhen von 2 mm im Feed und 1,5 mm im Permeat der Abtrenngrad von 80 % bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  erst bei einer spezifischen Membranfläche von mehr als  $10.000 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  erreicht. Bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und gleicher Kanalhöhenkombination – also der Konfiguration des Referenzfalls der ersten Trennstufe – liegt die spezifische Membranfläche mit ca.  $6070 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  mehr als  $1000 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  über dem Optimum. Sind die Feedkanäle doppelt so hoch wie die Permeatkanäle, ist der Abtrenngrad von 80 % bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  gar nicht zu erzielen, da die Triebkraft am Modulende aufgrund des hohen Druckverlustes nicht ausreicht.

Für die zweite Trennstufe ergibt sich ein ähnliches Verhalten der spezifischen Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kombinationen von Kanalhöhen, welches im Anhang 8.10 in Abbildung 8-11 dargestellt ist. Hier liegen die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten zwischen  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für Kanalhöhen von 2 mm und 1 mm im Feed beziehungsweise im Permeat und  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für Kanalhöhen von 1 mm und 3 mm im Feed beziehungsweise im Permeat. Die zugehörigen spezifischen Membranflächen liegen bei

$164,6 \text{ m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  beziehungsweise  $162,5 \text{ m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Somit ergeben sich bei der jeweils optimalen Eintrittsgeschwindigkeit lediglich marginale Unterschiede in der benötigten, spezifischen Membranfläche für alle Kombinationen aus Kanalhöhen. Für die Kanalhöhen des Referenzfalls werden in der zweiten Trennstufe bei der optimierten Geschwindigkeit von  $0,6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$   $163,7 \text{ m}^2$  je Tonne permeiertes  $\text{CO}_2$  benötigt. Auch für höhere Geschwindigkeiten von bis zu  $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  sind die spezifischen Membranflächen außer für Kanalhöhen von  $2 \text{ mm}$  im Feed und  $1 \text{ mm}$  im Permeat kleiner als  $200 \text{ m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Der große Unterschied zwischen den spezifischen Membranflächen der ersten und zweiten Trennstufe ist mit der unterschiedlichen Triebkraft und dem unterschiedlichen zu erreichenden Abtrenngrad der beiden Trennstufen zu begründen. Der Feed der zweiten Trennstufe ist bereits mit  $\text{CO}_2$  angereichert und aufgrund des Feeddruckes von  $4 \text{ bar}$  ergibt sich ein hoher  $\text{CO}_2$ -Partialdruck auf der Feedseite und damit eine hohe Permeationsrate.

### 5.3.3 Optimierte Eintrittsgeschwindigkeiten im Abtrennprozess

Durch die Optimierung der einzelnen Trennstufen ändern sich die austretenden Stoffmengenströme der ersten und zweiten Trennstufe. Dadurch ergeben sich bei der Integration in den  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess andere Eingangswerte für jede Trennstufe, da sich Änderungen in einer Trennstufe auf die andere auswirken. Daher werden in einem nächsten Schritt die Trennstufen im gesamten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess integriert betrachtet und optimiert. Das Verhältnis der Kanalhöhen von  $1 \text{ mm}$  im Feed und  $2 \text{ mm}$  im Permeat wird für beide Trennstufen angenommen, da sich an diesem als optimal gefundenen Verhältnis durch Integration in den Gesamtprozess nichts ändert. Die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten der isoliert betrachteten Trennstufen dienen dabei als Orientierung für die Parametervariation der Eintrittsgeschwindigkeiten. Diese liegen bei den Kanalhöhen von  $1 \text{ mm}$  im Feed und  $2 \text{ mm}$  im Permeat bei  $0,47 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  in der ersten Trennstufe und  $0,85 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  in der zweiten Trennstufe. In Abbildung 5-11 sind die Ergebnisse der simultanen Variation der Eintrittsgeschwindigkeiten beider Trennstufen dargestellt.

Zur Optimierung des gesamten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses hinsichtlich der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten ist neben der gesamten benötigten Membranfläche auch der elektrische Nettoverbrauch des Abtrennprozesses als Funktion beider Eintrittsgeschwindigkeiten aufgetragen. Die einzelnen Teilgraphen beschreiben jeweils die Entwicklung der Ergebnisgrößen bei konstant gehaltener Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe und Variation der Eintrittsgeschwindigkeit in die zweite Trennstufe zwischen  $0,8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  und  $1,2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Es werden Eintrittsgeschwindigkeiten in die erste Trennstufe von  $0,3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  und  $0,7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  untersucht.

Das Minimum der gesamten Membranfläche liegt bei höheren Eintrittsgeschwindigkeiten als bei isolierter Betrachtung der einzelnen Trennstufen. Die bei diesen Modulgeometrien minimierte, benötigte Membranfläche von weniger als  $2,5 \text{ Mio. m}^2$  ergibt sich bei den neuen optimierten Eintrittsgeschwindigkeiten von  $0,5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  für die erste Trennstufe und  $1,1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  für die zweite Trennstufe. Im Vergleich zum in Kapitel 5.2.2 definierten Referenzfall sinkt die benötigte Membranfläche damit um ca.  $0,6 \text{ Mio. m}^2$  beziehungsweise  $19,4 \%$ . Die Optimierung des Gesamtprozesses durch die geänderten Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten erhöhen die flächenspezifischen Permeationsraten aller Komponenten. Somit hat im optimierten Prozess die triebkraftmindernde Wirkung der Konzentrationspolarisation leicht zugenommen, sodass höhere Geschwindigkeiten erforderlich sind, um den Stofftransport in der Konzentrationsgrenzschicht zu erhöhen. Außerdem beeinflussen die Permeatströme der einen Trennstufe die Feedströme der anderen Trennstufe in Größe und Zusammensetzung.

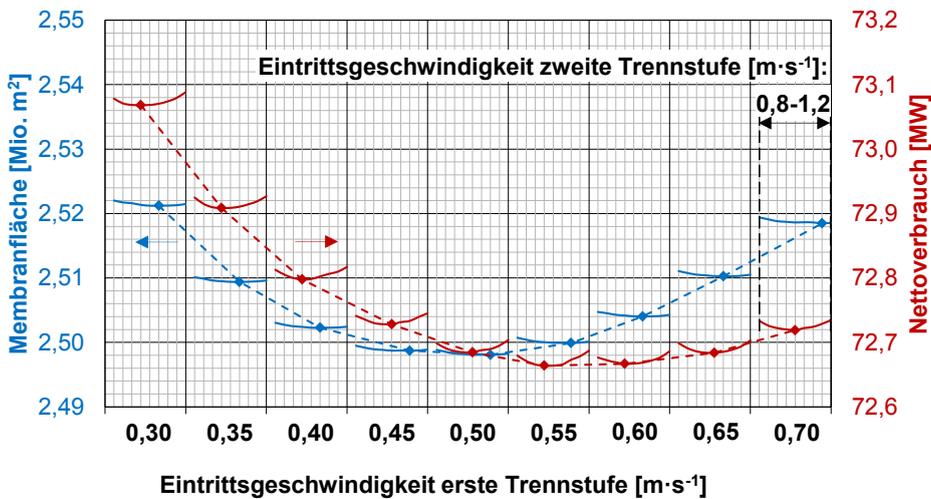


Abbildung 5-11: Gesamte Membranfläche und elektrischer Nettoverbrauch des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeiten der ersten und zweiten Trennstufe für Kanalhöhen im Feed von 1 mm und im Permeat von 2 mm; Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe von 0,3 m·s<sup>-1</sup> bis 0,7 m·s<sup>-1</sup> eingestellt und Eintrittsgeschwindigkeit in der zweiten Trennstufe von 0,8 m·s<sup>-1</sup> bis 1,2 m·s<sup>-1</sup> variiert; gestrichelte Linien verbinden minimale Membranfläche beziehungsweise minimalen Nettoverbrauch für jede Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe

Eine Eintrittsgeschwindigkeit von 0,55 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe und von 0,95 m·s<sup>-1</sup> in der zweiten Trennstufe ergeben die optimierte Kombination von Eintrittsgeschwindigkeiten bezüglich des Nettoverbrauchs des Abtrennprozesses. Durch die reduzierte Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe sinkt der aufzubereitende Volumenstrom je Modul, sodass sich die Modullänge zusätzlich zur Reduzierung durch die Optimierung auf ca. 1 m verringert. Der bei diesen Modulgeometrien minimierte Nettoverbrauch von 72,66 MW liegt 7,26 MW beziehungsweise 9,1 % unter dem Nettoverbrauch des in Kapitel 5.2.2 definierten Referenzfalls. Der Verlauf des Nettoverbrauchs korreliert mit dem Abtrenngrad der ersten Trennstufe. Dies ist damit zu begründen, dass mit steigendem Abtrenngrad der ersten Trennstufe sowohl der Druckverlust in den Feedkanälen ansteigt und somit die Leistung von Kompressor 1 zunimmt als auch der Permeatstrom und damit die Leistung von Kompressor 2 größer wird. Da sich die benötigte, spezifische Membranfläche in den Trennstufen je nach Eintrittsgeschwindigkeit unterscheidet, sind auch die CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteile des Permeatstroms der ersten Trennstufe sowie der Rückführung unterschiedlich. Diese Stoffmengenanteile bestimmen wiederum, welcher Abtrenngrad in der ersten und zweiten Trennstufe eingestellt werden muss, sodass gleichzeitig der Prozessabtrenngrad von 70 % und die CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% erreicht werden.

Die Minima für die benötigte Membranfläche und den Nettoverbrauch liegen bei unterschiedlichen Eintrittsgeschwindigkeiten. Im Fall der minimierten Membranfläche ist der Nettoverbrauch allerdings nur um 0,026 MW höher als im hinsichtlich des Nettoverbrauchs optimierten Fall. Andererseits wird bei minimiertem Nettoverbrauch nur eine um 2000 m<sup>2</sup> größere

Membranfläche als im Fall der minimierten Membranfläche benötigt. Die sich daraus ergebenden Unterschiede in den CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten der Prozessalternativen sind vernachlässigbar, sodass beide Prozessalternativen hinsichtlich der Kosten gleich sind. Beide Alternativen reduzieren die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten um 10,5 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> beziehungsweise 15,4 % im Vergleich zum Referenzfall auf 57,2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>.

Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten sinken auf 58,1 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>, wenn nur die Kanalhöhen optimiert und die Eintrittsgeschwindigkeiten für beide Trennstufen bei 1 m·s<sup>-1</sup> gehalten werden. Werden nur die Eintrittsgeschwindigkeiten variiert und die Kanalhöhen des Referenzfalls – 2 mm im Feed und 1,5 mm im Permeat – beibehalten, ergeben sich Membranflächen und Nettoverbräuche gemäß Abbildung 8-12 im Anhang 8.10. Die Gesamtmembranfläche ist für Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,3 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe und 0,65 m·s<sup>-1</sup> in der zweiten Trennstufe minimal. Der Nettoverbrauch des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses wird bei Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,35 m·s<sup>-1</sup> und 0,7 m·s<sup>-1</sup> in der ersten beziehungsweise zweiten Trennstufe minimiert. Für beide Varianten ergeben sich CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten von 58,1 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>.

### 5.3.4 Optimierte Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe

Die Eintrittsgeschwindigkeit beeinflusst sowohl den Druckverlust im Kanal als auch die Konzentrationspolarisation. Während höhere Überströmungsgeschwindigkeiten den Druckverlust verstärken, nimmt das Ausmaß der Konzentrationspolarisation mit steigender Geschwindigkeit ab. Nur Geschwindigkeiten kleiner als 1,5 m·s<sup>-1</sup> sind für die erste Trennstufe sinnvoll, da bei höheren Geschwindigkeiten der notwendige Abtrenngrad von 80 % aufgrund der verschwindenden Triebkraft am Modulende nicht erreicht werden kann. In der zweiten Trennstufe kann der dort notwendige Abtrenngrad von ca. 58,5 % auch bei Geschwindigkeiten von ca. 3 m·s<sup>-1</sup> erreicht werden.

Wird die Eintrittsgeschwindigkeit einer Trennstufe isoliert vom Abtrennprozess hinsichtlich der spezifischen Membranfläche optimiert, ergeben sich minimale spezifische Membranflächen in der ersten Trennstufe von 5000 m<sup>2</sup>·h·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von 0,3 m·s<sup>-1</sup> und in der zweiten Trennstufe von 163,7 m<sup>2</sup>·h·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von 0,6 m·s<sup>-1</sup>. Das Verhältnis der Kanalhöhen des Feeds und des Permeats hat ebenfalls Einfluss auf die benötigte Membranfläche. Dieses Verhältnis bestimmt die Geschwindigkeit im Permeat, sodass durch geeignete Wahl der Kanalhöhen diejenige Geschwindigkeit im Permeat eingestellt wird, bei der die triebkraftmindernden Effekte minimiert werden. Die optimalen Kanalhöhen liegen für beide Trennstufen im Feed bei 1 mm und im Permeat bei 2 mm. Für diese Kanalhöhen sind die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten 0,47 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe und 0,85 m·s<sup>-1</sup> in der zweiten Trennstufe.

Durch Integration der Membranmodule in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess verschieben sich diese optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten leicht zu höheren Werten, da die Austrittsströme der einen Trennstufe Auswirkungen auf die andere Trennstufe haben. Somit liegen nicht mehr die gleichen Bedingungen am Moduleintritt wie im Referenzfall vor. Wird der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess durch Wahl der Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten optimiert, ist zum einen die Membranfläche das Beurteilungskriterium. Zum anderen werden als universelle Vergleichsgröße von Prozessalternativen die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten angewandt. Diese sind für den Referenzfall sowie die optimierten Prozessalternativen in Abbildung 5-12 dargestellt.

Für den Referenzfall liegen die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten bei ca. 68 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>. Wird die Geschwindigkeit optimiert und werden die Kanalhöhen unverändert im Vergleich zum Referenzfall gelassen, können die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten um 14,5 % auf ca. 58,1 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> reduziert

werden. Eine gleiche Ersparnis hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten ergibt sich, wenn die Kanalhöhen optimiert und die Eintrittsgeschwindigkeiten des Referenzfalls beibehalten werden. Werden Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten optimiert, sinken die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten um 15,8 % auf 57,2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>. Der optimierte Abtrennprozess ergibt sich für Kanalhöhen von 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat sowie Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,5 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe und 1,1 m·s<sup>-1</sup> in der zweiten Trennstufe. Die benötigte Membranfläche liegt bei ca. 2,5 Mio. m<sup>2</sup> und damit 19,4 % unter der Membranfläche des Referenzfalls. Der Wirkungsgradverlust beträgt 6 %-Punkte. Der Abtrennprozess mit den hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhen optimierten Trennstufen wird im Folgenden optimierter Fall genannt. Für ihn verschieben sich die Abtrenngrade der beiden Trennstufen. In der ersten Trennstufe werden nun ca. 78,2 % und in der zweiten Trennstufe 65,2 % des in die jeweilige Trennstufe eintretenden CO<sub>2</sub> abgetrennt.

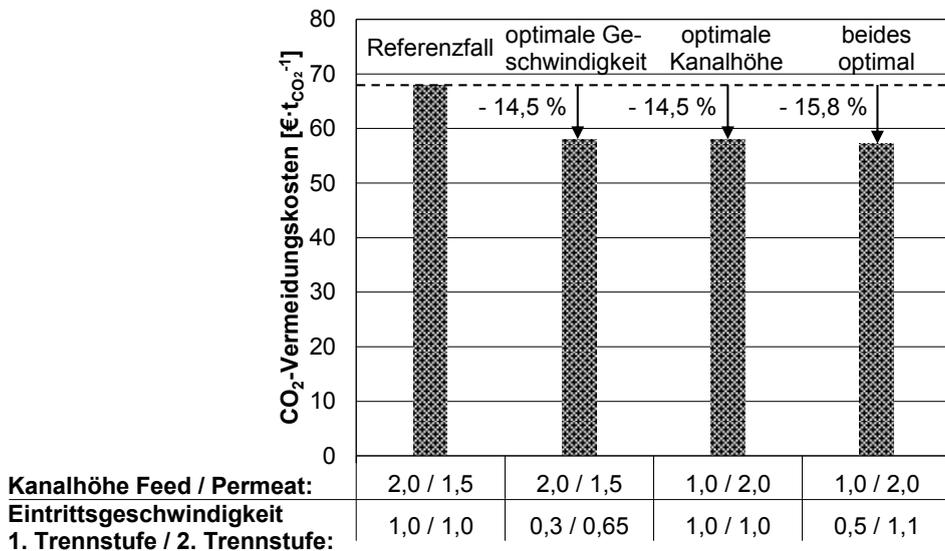


Abbildung 5-12: Reduzierte CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten durch optimierte Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten; Kanalhöhe in mm, Eintrittsgeschwindigkeit in m·s<sup>-1</sup>

### 5.4 Einteilung des Membranmoduls in Kompartimente

Neben der Parallelschaltung von Membranmodulen zur Reduzierung beziehungsweise Optimierung der Eintrittsgeschwindigkeit besteht die Möglichkeit, Modulblöcke mit jeweils mehreren parallelgeschalteten Modulen in Reihe zu schalten. Dabei wird der Retentatstrom des vorgelagerten Modulblocks als Feed des nachgelagerten Blocks verwendet und das Permeat in jedem Modulblock abgezogen. Das am Helmholtz-Zentrum Geesthacht entwickelte Konzept der Kompartimente ermöglicht eine kompakte Bauweise einer Reihenschaltung innerhalb eines Moduls. Dazu werden mehrere Membrantaschenstapel in einem Gehäuse in Reihe geschaltet. Ein Taschenstapel in dieser Reihenschaltung wird nachfolgend Kompartiment genannt. Der Nutzen dieser Reihenschaltung beziehungsweise Kompartimente liegt in der Erneuerung des Permeatstroms, da in jedem Modulblock das Permeat abgezogen wird. Durch den verkürzten Permeatkanal reduziert sich der Druckverlust auf der Permeatseite, wie in Abbildung 5-13 beispielhaft dargestellt ist. Allerdings ändert sich gleichzeitig auch das

Profil des  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteils im Permeat. In dem Beispiel aus Abbildung 5-13 liegt der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat bei drei Kompartimenten stets über dem  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil bei einem Kompartiment. Am Modulende ist das Retentat mit Stickstoff angereichert, sodass die Triebkraft für Stickstoff dort erhöht ist. Dadurch erhöht sich die Permeationsrate des Stickstoffs am Modulende und das Permeat hat einen hohen  $\text{N}_2$ -Stoffmengenanteil. Wird das Membranmodul nicht in Kompartimente unterteilt, wirkt dieser Stickstoff aufgrund des Gegenstrombetriebs über die gesamte Modullänge als Spülgas, da es den Permeatstrom verdünnt. Dieser Effekt kann bei Unterteilung in Kompartimente nicht über die gesamte Modullänge genutzt werden, sodass der durchschnittliche  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat bei Unterteilung in Kompartimente höher ist, wie in Abbildung 5-13 dargestellt ist. Insgesamt führt dies bei dem Beispiel zu einem höheren  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Permeat für drei Kompartimente im Vergleich zu einem Kompartiment, sodass die Triebkraft gemindert wird. In diesem Fall ist die Unterteilung in Kompartimente nicht vorteilhaft. Die Gesamtlänge des Moduls erhöht sich durch diese Unterteilung von ca. 2,2 m auf 2,5 m. Der Nutzen dieser Bauweise muss im Einzelfall geprüft werden. Bei welchen Bedingungen sich Kompartimente lohnen und wie diese aufzuteilen sind, wird im Folgenden untersucht.

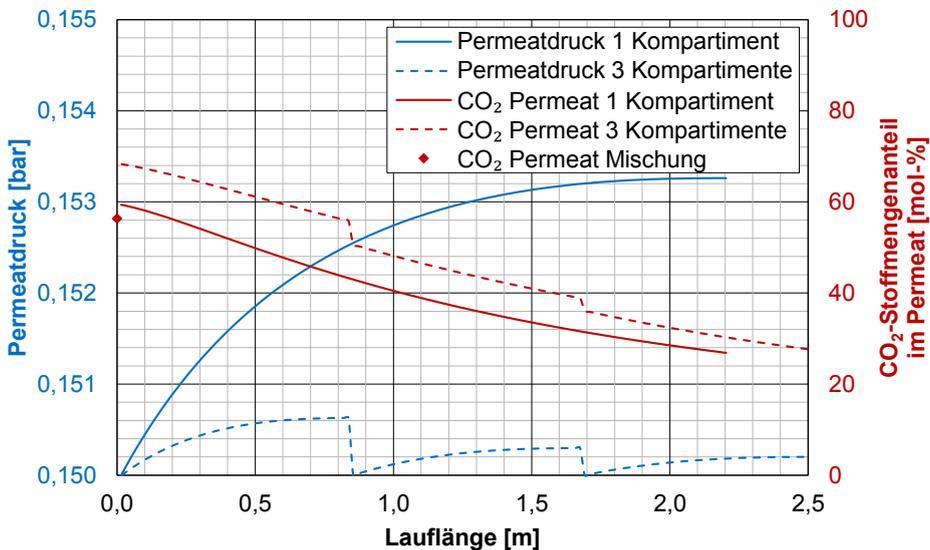


Abbildung 5-13: Profil des Permeatdruckes und des  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteils im Permeat für ein und drei Kompartimente entlang der Lauflänge des Membranmoduls sowie der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil der gemischten Permeatströme der drei Kompartimente

#### 5.4.1 Kompartimente mit gleicher Länge

Zunächst wird davon ausgegangen, dass jedes Kompartiment die gleiche Länge hat. Analog zum Vorgehen in Kapitel 5.3 wird für ein, zwei und drei Kompartimente die Eintrittsgeschwindigkeit variiert und die spezifische Membranfläche – also die Membranfläche bezogen auf die je Stunde permeierten Tonnen  $\text{CO}_2$  – bestimmt. Das Ergebnis dieser Analyse ist für die erste Trennstufe des Referenzfalls in Abbildung 5-14 festgehalten. Der Abtrenngrad wird konstant auf 80 % für jede Verschaltung und jede Eintrittsgeschwindigkeit gehalten.

In einem Bereich unterhalb von ca.  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ist die spezifische Membranfläche für ein Kompartiment niedriger als jene für zwei oder drei Kompartimente. Hier überwiegt der Effekt, dass bei mehreren Kompartimenten der höhere  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat die Triebkraft mindert. Für höhere Eintrittsgeschwindigkeiten steigt der Volumenstrom im Permeat ebenfalls an, sodass sich dort die Strömungsgeschwindigkeiten und damit auch der Druckverlust erhöhen. Zudem werden die Membranmodule mit steigenden Eintrittsgeschwindigkeiten länger. Dies bewirkt eine zusätzliche Zunahme des Druckverlustes. Dadurch wirkt sich ab einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  die Unterteilung des Permeatkanals positiv auf die Abtrennperformance aus. In einem Bereich von  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bis  $1,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  sind zwei Kompartimente hinsichtlich der spezifischen Membranfläche vorteilhaft. Bei einer weiteren Erhöhung der Eintrittsgeschwindigkeit zeigen drei Kompartimente die beste Abtrennleistung. Die jeweils minimale spezifische Membranfläche, die durch die optimale Wahl der Anzahl an Kompartimenten erzielt werden kann, ist durch die farbige Linie hervorgehoben.

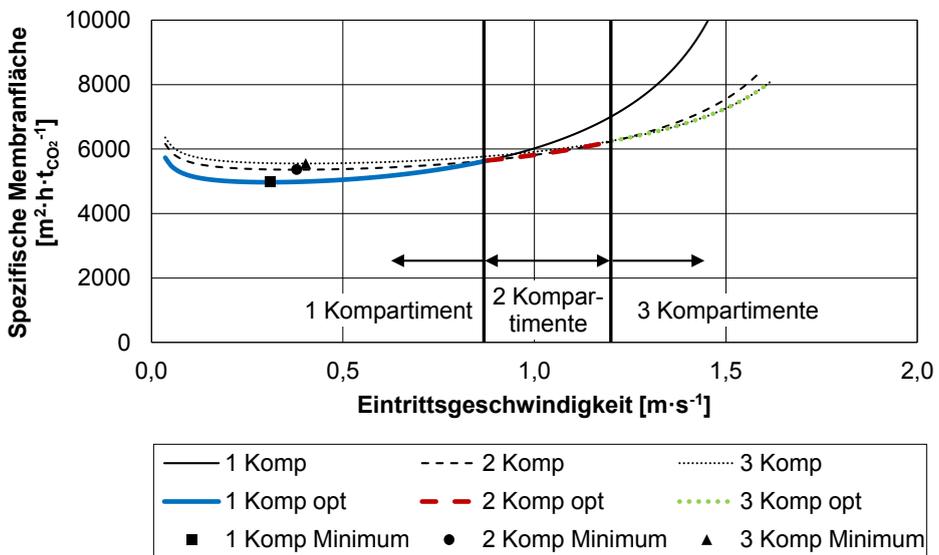


Abbildung 5-14: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei und drei Kompartimente (Komp) in der ersten Trennstufe des Referenzfalls; Markierungen geben das jeweilige Minimum der spezifischen Membranfläche für ein, zwei und drei Kompartimente an; fette Linien markieren die jeweils minimale spezifische Membranfläche aller möglicher Reihenschaltungen für eine Eintrittsgeschwindigkeit

Wird die jeweils optimale Eintrittsgeschwindigkeit für die verschiedenen Verschaltungstypen eingestellt, ist die Wahl eines Kompartiments in der ersten Trennstufe des Referenzfalls vorteilhaft. Dabei verschiebt sich die optimale Eintrittsgeschwindigkeit zu höheren Geschwindigkeiten, wenn mehr Kompartimente in Reihe geschaltet werden. Dies liegt daran, dass eine erhöhte Geschwindigkeit die Triebkraftminderung durch Konzentrationspolarisation reduzieren kann und gleichzeitig der Druckverlust im Permeat im Mittel vernachlässigbar klein bleibt. Diese Ergebnisse gelten für eine Kanalhöhe im Feed von 2 mm und im Permeat von 1,5 mm. Für die optimierten Kanalhöhen von 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat sind die Resultate

im Anhang 8.10 in Abbildung 8-13 dargestellt. Hier gibt es für keine Eintrittsgeschwindigkeit einen Schnittpunkt der Graphen. Dabei ist die spezifische Membranfläche für ein Kompartiment für alle Eintrittsgeschwindigkeiten am geringsten, sodass die Unterteilung in Kompartimente für diese Kombination an Kanalhöhen in keinem Fall vorteilhaft ist. Da der Permeatkanal die doppelte Höhe des Feedkanals hat und nicht – wie im Referenzfall – 25 % kleiner als der Feedkanal ist, reduziert sich auch die Strömungsgeschwindigkeit im Permeat. Die damit verbundenen niedrigeren Druckverluste im Permeat können durch die Unterteilung in Kompartimente kaum weiter reduziert werden. Dagegen wirkt sich die Änderung des Profils der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteile im Permeat durch die Reihenschaltung nachteilig auf die Triebkraft aus.

Für die zweite Trennstufe sind die Ergebnisse in Abbildung 5-15 dargestellt. Zwischen Referenzfall und optimiertem Fall ergeben sich keine wesentlichen Unterschiede im Verlauf der Graphen. Für den Referenzfall liegen die spezifischen Membranflächen bei der optimalen Eintrittsgeschwindigkeit für mehrere Kompartimente niedriger als für ein Kompartiment. Somit würde sich die Einteilung in Kompartimente in der zweiten Trennstufe des Referenzfalls lohnen. Allerdings liegen die spezifischen Membranflächen für alle drei Optima sehr nahe beieinander, sodass der Vorteil hinsichtlich der Triebkraft gering ist. Dadurch ist der erhöhte konstruktive Aufwand, der durch die Unterteilung aufgrund der Verrohrung entsteht, nicht gerechtfertigt. Für die optimierten Kanalhöhen liegen die spezifischen Membranflächen bei der jeweils optimalen Eintrittsgeschwindigkeit für alle Verschaltungen bei ca.  $164 \text{ m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Im Referenzfall und im Fall optimierter Kanalhöhen lohnen sich mehrere Kompartimente für höhere Eintrittsgeschwindigkeiten als die optimale Geschwindigkeit von  $0,9 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

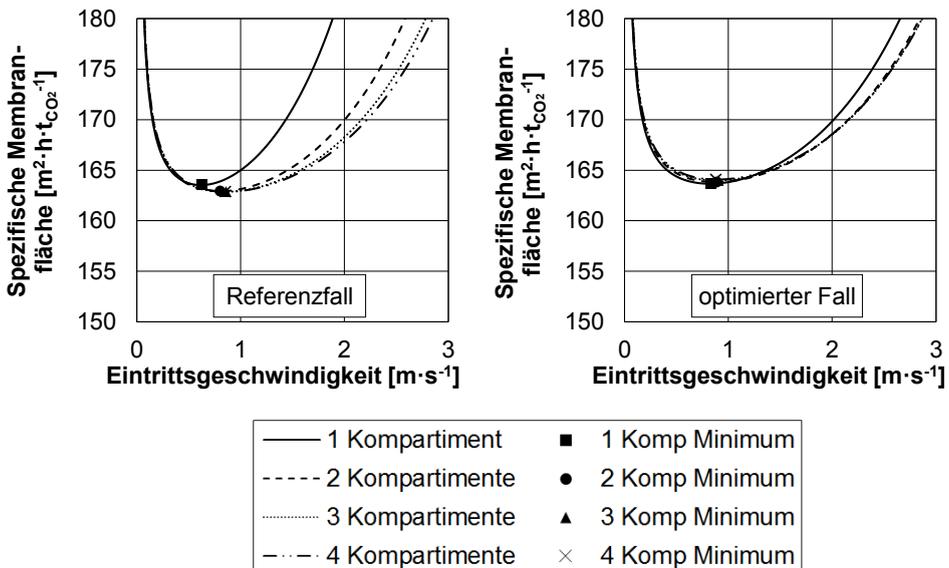


Abbildung 5-15: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei, drei und vier Kompartimente (Komp) in der zweiten Trennstufe des Referenzfalls (links) und des hinsichtlich der Kanalhöhe optimierten Falls (rechts)

5.4.2 Kompartimente mit unterschiedlicher Länge

Alternativ zu der Unterteilung in zwei gleich lange Kompartimente kann das Membranmodul auch in zwei unterschiedlich lange Kompartimente aufgeteilt werden. Die spezifischen Membranflächen für unterschiedliche Anteile des ersten Kompartiments an der Gesamtlänge des Membranmoduls bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit zeigt Abbildung 5-16 für die erste Trennstufe des Referenzfalls. Wird der Anteil des ersten Kompartiments an der Gesamtlänge des Membranmoduls erhöht, ergeben sich zunächst größere spezifische Membranflächen bei optimaler Auslegung der Eintrittsgeschwindigkeit im Vergleich zu einem Kompartiment. Überschreitet das erste Kompartiment einen Anteil von 66 % an der Gesamtlänge, verringert sich die spezifische Membranfläche bei der optimalen Geschwindigkeit wieder. Das Verhalten des Membranmoduls nähert sich für größere Anteile des ersten Kompartiments dem Verhalten mit einem Kompartiment an. Für eine Geschwindigkeit von  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  sind Anteile des ersten Kompartiments von 17 % bis 33 % optimal. Im ersten Kompartiment ist die Strömungsgeschwindigkeit im Permeat aufgrund der hohen Permeationsrate groß, jedoch der Permeatkanal kurz. Dagegen ist im zweiten Kompartiment der Permeatkanal lang, die Strömungsgeschwindigkeit ist jedoch kleiner. Somit reduziert sich der damit einhergehende Druckverlust im Permeat durch die Unterteilung in zwei Kompartimente von 38 mbar für ein Kompartiment auf 4 mbar im ersten Kompartiment und 16 mbar im zweiten Kompartiment. Weiterhin schneidet bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  nur die Aufteilung, bei der das erste Kompartiment 83 % der Modullänge ausmacht, schlechter ab als ein Kompartiment. Es ergibt sich für jede Eintrittsgeschwindigkeit eine andere optimale Aufteilung der zwei Kompartimente. Die Unterteilung in zwei gleich große Kompartimente, ist im gesamten betrachteten Bereich der Eintrittsgeschwindigkeiten nicht die optimale Aufteilung.

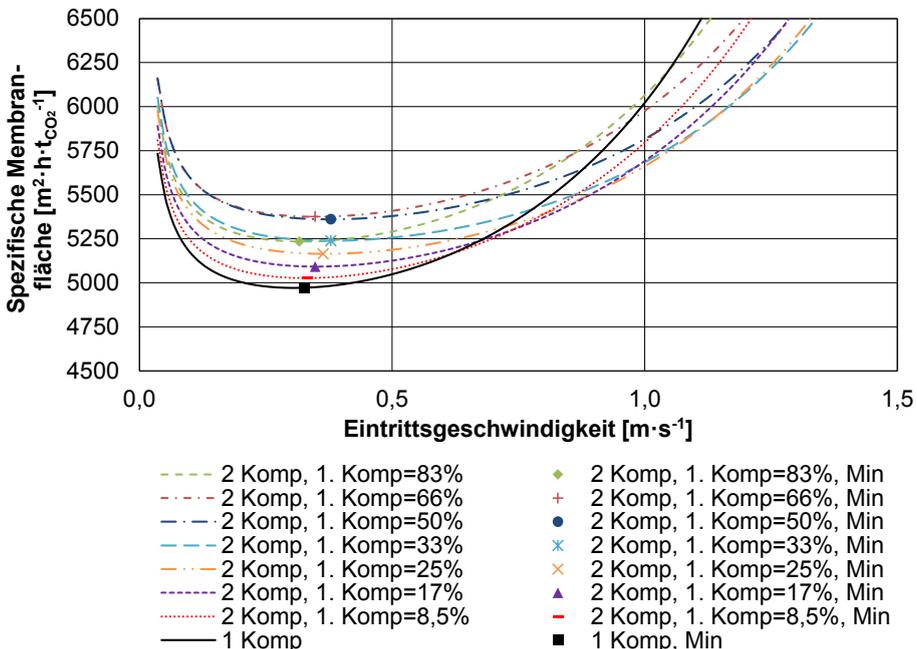


Abbildung 5-16: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für unterschiedliche Anteile des ersten Kompartiments (Komp) an der Gesamtlänge des Membranmoduls in der ersten Trennstufe des Referenzfalls

### 5.4.3 Schlussfolgerungen bezüglich der Einteilung in Kompartimente

Die Unterteilung in Kompartimente reduziert die Strömungsgeschwindigkeit und damit den Druckverlust in den Permeatkanälen. Gleichzeitig erhöht sich jedoch der durchschnittliche  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat. Der Nutzen der Kompartimente hängt davon ab, ob der  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Permeat durch die Unterteilung gesenkt oder gesteigert wird. Für den Referenzfall ist eine Unterteilung der Membranmodule der ersten Trennstufe in zwei gleich lange Kompartimente sinnvoll, wenn die Eintrittsgeschwindigkeit zwischen  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $1,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  liegt. Bei höheren Geschwindigkeiten erweisen sich drei gleich lange Kompartimente hinsichtlich der spezifischen Membranfläche als effizienteste Reihenschaltung. Eine Unterteilung in unterschiedlich lange Kompartimente bringt eine Verbesserung gegenüber der Einteilung in zwei gleich lange Kompartimente. Dabei sollte das erste Kompartiment kürzer als das zweite Kompartiment sein. Wird das Verhältnis von Permeatkanalhöhe und Feedkanalhöhe vergrößert, verringert sich die Strömungsgeschwindigkeit im Permeat, sodass bei Kanalhöhen von 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat für keine Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle ein Vorteil durch die Kompartimente entsteht. Während in der ersten Trennstufe bei der für die jeweilige Anzahl an Kompartimenten optimalen Geschwindigkeit ein Kompartiment die geringste spezifische Membranfläche aufweist, ergibt sich in der zweiten Trennstufe ein minimaler Vorteil für mehrere Kompartimente bei der jeweils optimalen Eintrittsgeschwindigkeit. Dieser Vorteil ist jedoch so gering, dass der konstruktive Aufwand nicht lohnt.

## 5.5 Vergleich Gegenstrombetrieb und Gleichstrombetrieb

Im Folgenden wird untersucht, ob und unter welchen Umständen der Gleichstrombetrieb dem Gegenstrombetrieb vorzuziehen ist. Generell wird der Betrieb eines Membranmoduls im Gegenstrom als vorteilhaft gegenüber dem Betrieb im Gleichstrom angesehen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im Gegenstrombetrieb aufgrund der Profile der Stoffmengenanteile und Drücke im Feed und Permeat im Durchschnitt eine höhere Triebkraft für die bevorzugt permeierende Komponente existiert. Beispielhaft sind in Abbildung 5-17 diese Profile für die erste Trennstufe bei einer Modullänge von 5 m dargestellt. Während sich die Verläufe des Feeddruckes bei beiden Betriebsweisen ähneln und die durchschnittlichen Permeatdrücke ähnlich sind, gibt es Unterschiede bei den Profilen des  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteils im Feed und Permeat. Zwar ist der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Feed am Modulende im Gegenstrombetrieb aufgrund der höheren Abreicherung geringer als im Gleichstrombetrieb, aber der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat liegt im Gegenstrombetrieb im vorliegenden Fall 10 bis 25 mol-% unter dem des Gleichstrombetriebs. Vor allem am Modulende permeiert mehr Stickstoff durch die Membran als  $\text{CO}_2$ , sodass Stickstoff im Permeat den  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil verringert und somit die Funktion eines Spülgases übernimmt. Dadurch hat das Permeat im Gegenstrombetrieb jedoch keine geringere  $\text{CO}_2$ -Reinheit, da auch im Gleichstrombetrieb der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat am Modulende niedriger ist. Dort liegt im Gleichstrombetrieb jedoch – wie die Pfeile in Abbildung 5-17 (links) anzeigen – der Permeataustritt, während er im Gegenstrombetrieb am Modulanfang liegt, wo der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat am höchsten ist. Die Partialdruckdifferenz ist am Modulanfang bei beiden Betriebsweisen am größten. Allerdings ist im Gegenstrombetrieb der Druckverlauf im Permeat vorteilhaft, da der geringste Druck – der Saugdruck der Vakuumpumpe – am Modulanfang vorliegt und somit den Partialdruck im Permeat verringert. Im Gleichstrombetrieb liegen sowohl höchster Permeatdruck als auch höchster  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil am Modulanfang, sodass der Partialdruck dort viel höher als jener bei Gegenstrombetrieb ist.

In Ausnahmefällen kann jedoch auch der Gleichstrombetrieb vorteilhaft sein. Dies ist vor allem der Fall, wenn eine schnell permeierende Komponente, die nicht die Produktkomponente ist, als Spülgas im Permeatraum fungieren kann. In dem der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess kann der schnell permeierende Wasserdampf die Rolle des Spülgases übernehmen. Andere Spülgasquellen, die unter Umständen einen 4-End-Betrieb erfordern, kommen in der vorliegenden Arbeit nicht infrage, da sie entweder das Permeat verunreinigen oder nur in Kombination mit einem Eingriff in das bestehende Kraftwerk möglich sind. Der permeierte Wasserdampf ist ohnehin Teil des Permeats und kann beispielsweise durch Adsorptionstrocknung leicht aus dem CO<sub>2</sub>-Produktstrom entfernt werden.

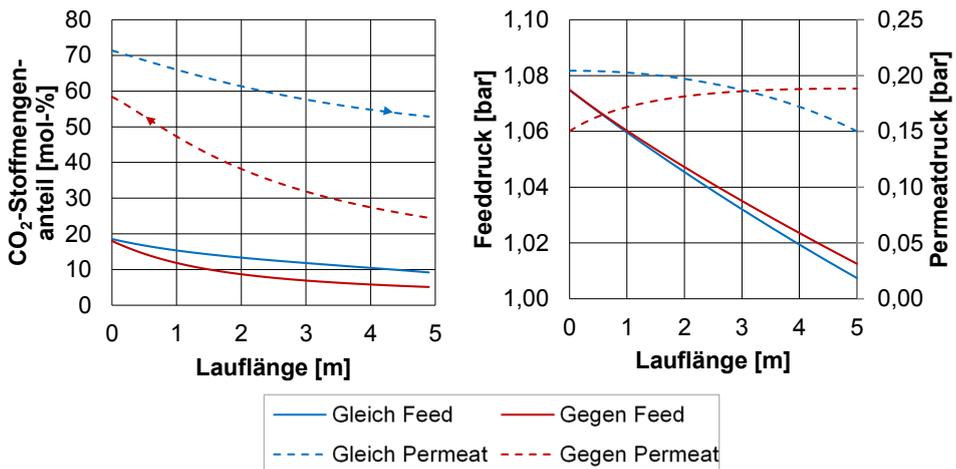


Abbildung 5-17: CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil (links) und Druck (rechts) auf der Feed- und Permeatseite eines Membranmoduls bei Gleich- und Gegenstrombetrieb für den Referenzfall der ersten Trennstufe bei einer Modullänge von 5 m

Der Nutzen dieses Spülgaseffektes des Wasserdampfes wird im Folgenden untersucht. Dazu wird in Kapitel 5.5.1 zunächst analysiert, unter welchen Bedingungen der Gleichstrombetrieb gegenüber dem Gegenstrombetrieb vorteilhaft ist. Die Spülgaswirkung wird detailliert in Kapitel 5.5.2 vorgestellt. Daraufhin wird in Kapitel 5.5.3 untersucht, ob die Triebkraftherhöhung durch den Wasserdampf im Permeat in der zweiten Trennstufe unter den in der vorliegenden Arbeit angenommenen Standardbedingungen erzielt werden kann.

### 5.5.1 Vergleich der Abtrenngrade bei hohem Druckverhältnis

Ausgehend von den Parametern der ersten Trennstufe gemäß Kapitel 5.2.2 wird die Modullänge zwischen 0,1 m und 5 m variiert und der resultierende Abtrenngrad für den Betrieb in Gegenstrom und Gleichstrom ausgewertet. Die Differenz zwischen dem Abtrenngrad bei Gegenstrombetrieb und dem Abtrenngrad bei Gleichstrombetrieb ist in Abbildung 5-18 aufgetragen. Bei dem Feeddruck des Referenzfalls von 1 bar zeigt sich bei keiner Modullänge ein Vorteil des Gleichstrombetriebs. Allerdings ist eine Verbesserung des Abtrenngrades im Gleichstrombetrieb gegenüber dem Gegenstrombetrieb für einen höheren Feeddruck von 4 bar zu erkennen. Der maximale Unterschied zugunsten des Gleichstrombetriebs im Abtrenngrad liegt bei einer Modullänge von 0,4 m bei 0,1 %-Punkten. Die absoluten Werte des Abtrenngrades liegen dabei bei ca. 32,1 % im Gegen- und 32,2 % im Gleichstrombetrieb,

sodass der Abtrenngrad geringer als der für die erste Trennstufe geforderte Abtrenngrad von ca. 80 % ist. Ein Membranmodul, welches insgesamt einen Abtrenngrad von 80 % erreicht und in den ersten 0,4 m im Gleich- und den Rest im Gegenstrom betrieben wird, benötigt 7,5 % weniger Membranfläche als ein Modul, welches bei sonst gleichen Bedingungen nur im Gegenstrom betrieben wird. Allerdings ist ein Feeddruck von 4 bar energetisch nicht sinnvoll, da der gesamte Rauchgasstrom auf diesen Druck komprimiert werden müsste und über den expandierenden Rezirkulationsstrom keine Energie zurückgewonnen werden könnte. Allerdings soll dieses Beispiel zeigen, dass ein Betrieb eines Membranmoduls im Gleichstrom nicht direkt ausgeschlossen werden kann.

Für den geforderten Abtrenngrad von 80 % in der ersten Trennstufe ist bei einem Feeddruck von 1 bar und Betrieb im Gegenstrom eine Länge des Membranmoduls von ca. 5 m notwendig. Bei dieser Modullänge liegt der Abtrenngrad im Gleichstrombetrieb bei nur ca. 62 %, sodass die Differenz der Abtrenngrade bei 18 %-Punkten liegt. Dies zeigt eindeutig, dass der Gleichstrombetrieb über die gesamte Modullänge nachteilig ist. Jedoch könnte der Betrieb des vorderen Teils des Membranmoduls im Gleichstrom vorteilhaft sein, wenn es gelingt, den beobachteten Vorteil bei einem Feeddruck von 4 bar durch geeignete Prozessführung auch bei 1 bar zu erzielen. Dazu wird im Folgenden untersucht, worin sich der Betrieb bei den verschiedenen Feeddrücken unterscheidet.

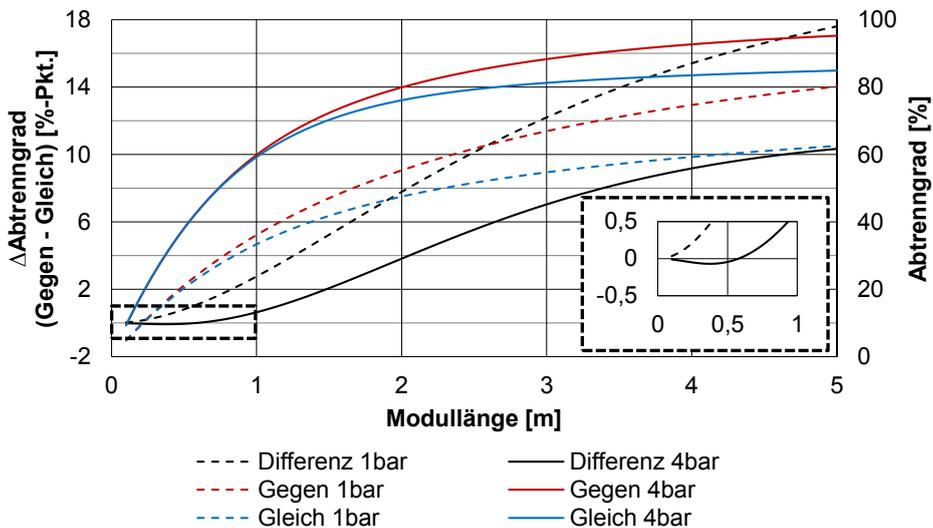


Abbildung 5-18: Abtrenngrad im Gegenstrom- und Gleichstrombetrieb und deren Differenz für Modullängen zwischen 0,1 m und 5 m und für einen Feeddruck von 1 bar beziehungsweise 4 bar; sonstige Parameter entsprechen denen der ersten Trennstufe des Referenzfalls

### 5.5.2 Wasserdampf als Spülgas im Permeat bei hohem Druckverhältnis

In Abbildung 5-19 ist der Wasserdampfstrom im Permeat für den Betrieb in Gegen- und Gleichstrom und für Feeddrücke von 1 bar beziehungsweise 4 bar dargestellt. Die dargestellten Stoffmengenströme gelten für ein einziges Membranmodul. Der Wasserdampfstrom ist

im Gegenstrombetrieb vor allem am Permeataustritt – also am Anfang des Moduls – hoch. Da die Wasserdampf-Permeanz mit  $30 \text{ m}^3(\text{i.N.})\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{bar}^{-1}$  sehr hoch ist, permeiert ein Großteil des Wasserdampfs bereits am Anfang des Membranmoduls durch die Membran. Dies zeigt der Graph des Wasserdampf-Permeationsstroms in Abbildung 5-19 (rechts). Dieser Wasserdampf strömt im Gleichstrombetrieb über die gesamte Länge des Moduls im Permeat, wohingegen im Gegenstrombetrieb der Wasserdampf direkt das Modul verlässt, da der Permeatabzug am Modulanfang liegt. Daher kann der Wasserdampf im Gleichstrom längere Zeit als Spülgas fungieren. Im Durchschnitt strömen  $4 \text{ kmol}\cdot\text{h}^{-1}$  an Wasserdampf im Gleichstrombetrieb im Permeat, wohingegen lediglich  $2,4 \text{ kmol}\cdot\text{h}^{-1}$  an Wasserdampf im Mittel im Gegenstrombetrieb durch die Membrantaschen strömen.

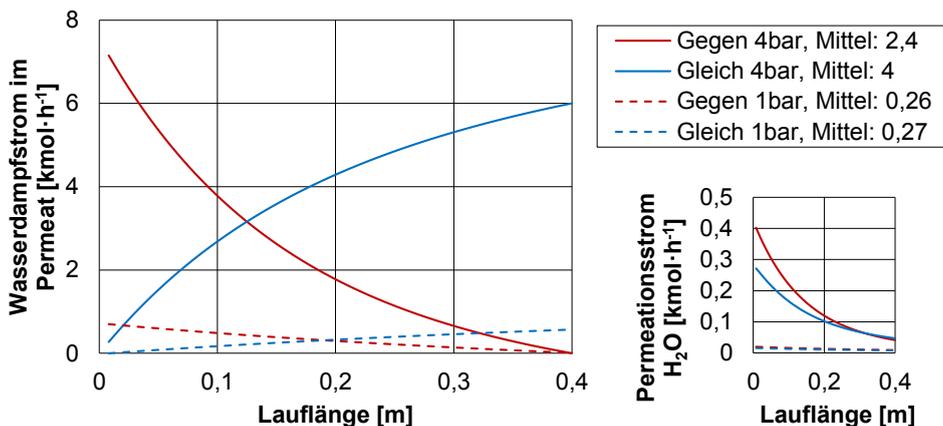


Abbildung 5-19: Wasserdampfstrom im Permeat (links) und Wasserdampf-Permeationsstrom (rechts) für ein Modul bei einer Modullänge von 0,4 m, einem Feeddruck von 1 bar beziehungsweise 4 bar und Betrieb des Moduls im Gegenstrom beziehungsweise Gleichstrom, sonstige Parameter entsprechen denen der ersten Trennstufe des Referenzfalls

Neben dem im Mittel höheren Wasserdampfstrom im Permeat bei Gleichstrombetrieb und einem Feeddruck von 4 bar ist auch der Anteil des Wasserdampfes im Permeat bei Gleichstrombetrieb höher, wie in Abbildung 5-20 (links) dargestellt. Der hohe Wasserdampfanteil sorgt für den Spülgaseffekt, indem er auf der Permeatseite den  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil, dessen Verlauf über die Modullänge in Abbildung 5-20 (rechts) dargestellt ist, verringert. Damit sinkt der  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Permeat, sodass die Triebkraft des  $\text{CO}_2$  gesteigert wird.

Bei einem Feeddruck von 1 bar liegen die Mittelwerte der Wasserdampfströme im Permeat für beide Betriebsweisen nahe beieinander. Aufgrund der geringeren Triebkraft für den Wasserdampf bei einem Feeddruck von 1 bar vergleichmäßig sich die Permeation des Wasserdampfes über die gesamte Modullänge, sodass auch am Modulende noch der Wasserdampfanteil im Permeat im Gegenstrombetrieb ungefähr dem Anteil im Gleichstrombetrieb entspricht. Weiterhin ergibt sich ein nahezu gleicher Verlauf des Wasserdampf-Stoffmengenanteils im Permeat über die Modullänge in beiden Betriebsweisen. Daher hat der Spülgaseffekt bei einem Feeddruck von 1 bar bei beiden Betriebsweisen die gleiche Wirkung.

Die Differenz zwischen den Wasserdampf-Stoffmengenanteilen im Permeat bei Gleich- und Gegenstrombetrieb bei 4 bar von ca. 4 mol-% gibt es bei einem Feeddruck von 1 bar damit nicht mehr. Weiterhin liegt der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat im Gegenstrombetrieb bei einem Feeddruck von 1 bar 2 mol-% unter dem  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil bei Gleichstrombetrieb. Gegen ist der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Gegenstrombetrieb bei einem Feeddruck von 4 bar 2 mol-% geringer als jener bei Gleichstrombetrieb. Somit ist die Triebkraft von  $\text{CO}_2$  bei 1 bar im Gegenstrombetrieb besser als im Gleichstrombetrieb.

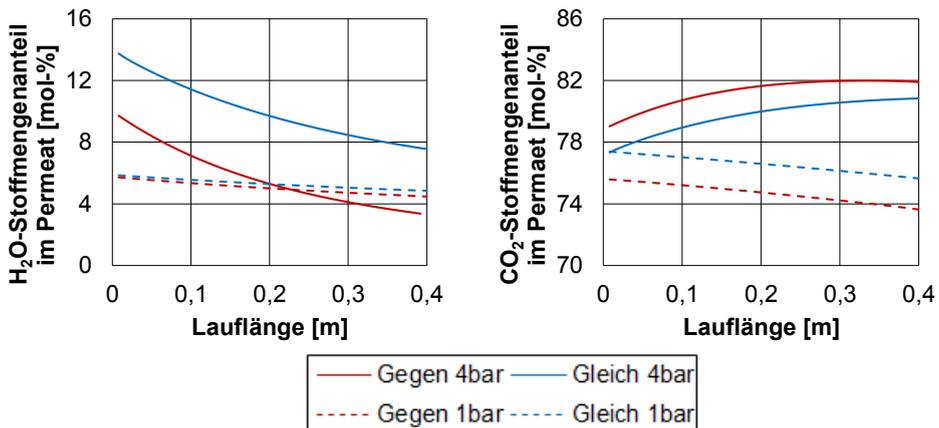


Abbildung 5-20: Stoffmengenanteile von Wasserdampf (links) und  $\text{CO}_2$  (rechts) im Permeat bei einer Modullänge von 0,4 m, einem Feeddruck von 1 bar beziehungsweise 4 bar und Betrieb des Moduls im Gegenstrom beziehungsweise Gleichstrom; sonstige Parameter entsprechen denen der ersten Trennstufe des Referenzfalls

Die Permeationsrate des Wasserdampfes kann durch einen höheren Stoffmengenanteil im Feed erhöht werden. Dies kann damit erreicht werden, dass weniger Wasserdampf vor der  $\text{CO}_2$ -Abtrennung in dem Wasserabscheider gemäß Abbildung 2-13 abgetrennt wird. Im Extremfall, bei dem außer in der Kühlwäsche der Wasserdampfanteil gar nicht reduziert wird, ergibt sich am Eintritt in die erste Trennstufe – also nach dem Mischen mit dem Rezirkulationsstrom – ein Wasserdampfanteil von ca. 2,1 mol-% statt 0,9 mol-%. Dies erhöht zwar sowohl den Wasserdampf-Stoffmengenanteil im Permeat als auch den  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad bei beiden Betriebsweisen, aber der Spülgaseffekt wird bei beiden Betriebsweisen gleich verstärkt. Somit kann mit einem gesteigerten Wasserdampfanteil auch kein Nutzen durch den Betrieb des vorderen Teils des Moduls im Gleichstrom erzielt werden.

### 5.5.3 Partieller Gleichstrombetrieb in der zweiten Trennstufe

Für die zweite Trennstufe ist ebenfalls unter Bedingungen des Referenzfalls bei keiner Modullänge ein Vorteil des Gleichstrombetriebs erkennbar. In der zweiten Trennstufe liegt der Feeddruck bereits im Referenzfall bei 4 bar. Wird der Permeatdruck von 1 bar auf 0,15 bar gesenkt, zeigt sich analog zur ersten Trennstufe ein leichter Vorteil des Gleichstrombetriebs bei Modullängen von bis zu 0,7 m. Allerdings ist dieser Vorteil mit einer für den Gleichstrombetrieb vorteilhaften Differenz der Abtrenngrade von maximal 0,05 %-Punkten verschwindend gering. Dies zeigt jedoch, dass nicht allein der Feeddruck für die Differenz der Wasser-

dampf-Stoffmengenanteile im Permeat zwischen Gleich- und Gegenstrombetrieb ausschlaggebend ist, sondern auch das Druckverhältnis – ausgedrückt als Feeddruck dividiert durch den Permeatdruck. Dieses liegt im Referenzfall bei 7 beziehungsweise 4 in der ersten beziehungsweise zweiten Trennstufe und bei 27 für den angenommenen Fall mit 4 bar im Feed und 0,15 bar im Permeat. In der zweiten Trennstufe liegt der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Feed bei ca. 60 mol-%, sodass der hohe CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Feed von 2,4 bar bereits für eine gute Triebkraft sorgt. Dabei fällt die Minderung des CO<sub>2</sub>-Partialdruckes im Permeat durch den Spülgaseneffekt nicht so stark ins Gewicht, obwohl für einen Permeatdruck von 0,15 bar der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeat bei Gegenstrombetrieb ca. 6 mol-% über dem Anteil bei Gleichstrombetrieb liegt, wie Abbildung 5-21 verdeutlicht.

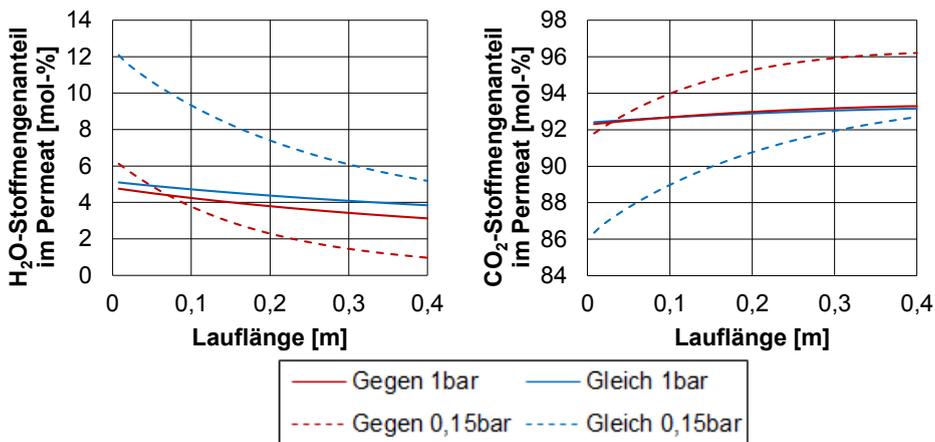


Abbildung 5-21: Stoffmengenanteile von Wasserdampf (links) und CO<sub>2</sub> (rechts) im Permeat bei einer Modullänge von 0,4 m, einem Permeatdruck von 1 bar beziehungsweise 0,15 bar und Betrieb des Moduls im Gegenstrom beziehungsweise Gleichstrom, sonstige Parameter entsprechen denen der zweiten Trennstufe des Referenzfalls

Allerdings ergibt sich ein – wenn auch nicht signifikanter – Vorteil für die Konzeption des Membranmoduls mit zwei Kompartimenten, von denen das erste im Gleichstrom und das zweite im Gegenstrom betrieben wird, für den hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall. Im Vergleich zu der Modulgestaltung mit einem Kompartiment verringert sich die benötigte Membranfläche um bis zu 0,2 %, wie in Abbildung 5-22 verdeutlicht wird. Dabei hat das erste Kompartiment einen Anteil von ca. 34 % an der gesamten Modullänge beziehungsweise eine Länge von 0,25 m. Wird das erste Kompartiment dagegen im Gegenstrom betrieben, liegt die Ersparnis an Membranfläche ebenfalls bei ca. 0,26 %. Allerdings ist die minimal benötigte Membranfläche geringfügig kleiner, wenn das erste Kompartiment im Gleichstrom betrieben wird. Wird die Unterteilung der Membranmodule in zwei Kompartimente in Betracht gezogen, sollte das erste Kompartiment somit im Gleichstrom betrieben werden. Ist der Anteil des ersten Kompartiments größer als 34 %, steigt die benötigte Membranfläche wieder an und liegt ab einem Anteil von 60 % über der Membranfläche, die für den Betrieb mit einem Kompartiment notwendig ist. Der Verlauf des Graphen für zwei Kompartimente, die beide im Gegenstrom betrieben werden, ist mit den Erläuterungen zu

Abbildung 5-16 zu erklären. Ab einer gewissen Länge des ersten Kompartiments ist die Unterteilung in zwei Kompartimente bezüglich der benötigten Membranfläche schlechter als ein Membranmodul mit einem Kompartiment. Die gleiche Analyse für die erste Trennstufe des hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Falls ergibt, dass keine Variante der Unterteilung in zwei Kompartimente hinsichtlich der benötigten Membranfläche vorteilhaft ist, wie im Anhang 8.10 in Abbildung 8-14 gezeigt wird.

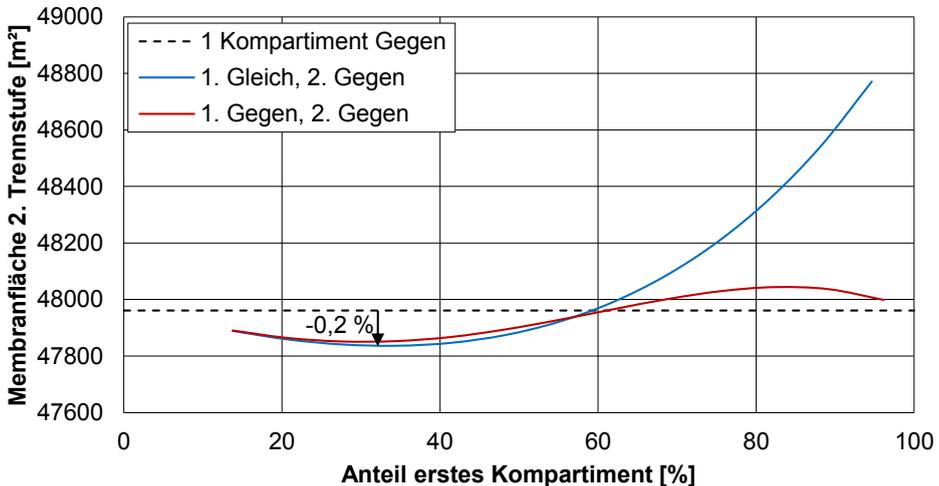


Abbildung 5-22: Benötigte Membranfläche der zweiten Trennstufe bei variabler Unterteilung des Membranmoduls in zwei Kompartimente für den hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall; erstes Kompartiment wird im Gleichstrom oder Gegenstrom betrieben; zweites Kompartiment wird im Gegenstrom betrieben

#### 5.5.4 Schlussfolgerungen zur Strömungsführung

Allgemein ist der Betrieb eines Membranmoduls im Gegenstrom aufgrund der Profile des Druckes und der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteile im Feed und Permeat vorteilhaft. Für die erste Trennstufe des Referenzfalls liegt der Abtrenngrad bei einer Modullänge von 5 m im Gegenstrombetrieb bei ca. 80 %, während er im Gleichstrombetrieb lediglich bei 62 % liegt. Bei einem hohen Druckverhältnis zwischen Feed und Permeat von 27 ist der Betrieb eines kurzen Membranmoduls mit einer Modullänge von bis zu 0,6 m im Gleichstrom leicht vorteilhaft. Beispielsweise ergibt sich für die erste Trennstufe bei einer Modullänge von 0,4 m ein um 0,1 %-Punkte besserer Abtrenngrad im Gleichstrom als im Gegenstrom. Dies liegt an dem Spülgaseffekt des permeierten Wasserdampfes. Am Modulanfang permeiert bei beiden Betriebsweisen viel Wasserdampf durch die Membran. Im Gleichstrombetrieb strömt dieser Wasserdampfstrom durch den gesamten Permeatkanal und verringert somit den  $\text{CO}_2$ -Partialdruck im Permeat. Im Gegenstrombetrieb verlässt der Wasserdampf, der am Modulanfang permeiert, direkt das Membranmodul, da der Permeataustritt am Modulanfang liegt. Somit ist im Gegenstrombetrieb der Spülgaseffekt des Wasserdampfes gemindert. Allerdings ist es nicht möglich, diesen vorteilhaften Effekt auch für ein in der ersten Trennstufe des Referenzfalls vorliegendes Druckverhältnis von 7 auszunutzen. Daher ist es sinnvoll, das Membranmodul über die gesamte Modullänge im Gegenstrom zu betreiben. Für die zweite

Trennstufe verringert sich die Membranfläche um 0,2 % bei Aufteilung des Membranmoduls in zwei Kompartimente. Dabei ergibt sich ein nicht signifikanter Vorteil, wenn das erste Kompartiment im Gleichstrom und nicht im Gegenstrom betrieben wird.

### 5.6 Bestimmung der Modulhöhe und Modulbreite

Für das Referenzmodul und das hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierte Modul liegt die Modulbreite und -höhe bei 2 m. Im Folgenden wird untersucht, welchen Einfluss die Modulhöhe auf die Abtrennperformance hat. Hierzu werden in Kapitel 5.6.1 die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten als Bewertungsgröße genutzt. Zusätzlich werden bei der Bestimmung der Modulhöhe und -breite die Packungsdichte des Membranmoduls, die Anzahl der Module sowie der Volumenstrom je Modul berücksichtigt. Diese Untersuchungen sind in Kapitel 5.6.2 beschrieben. Weiterhin haben die zu verarbeitenden Volumenströme je Modul Einfluss auf die Wahl der Modulgröße, da die Anschlussrohre dementsprechend dimensioniert werden. Die Auslegung der Anschlussrohre und ihre Auswirkung auf die Wahl der Modulhöhe werden in Kapitel 5.6.3 dargestellt. Dabei wird – wie in Kapitel 5.1 erläutert – stets angenommen, dass die Modulhöhe der Modulbreite entspricht.

#### 5.6.1 Abtrennperformance und CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten

In Abbildung 5-23 (links) ist die Abhängigkeit der Membranfläche von der Modulhöhe bei konstantem Abtrenngrad der ersten Trennstufe dargestellt. Dabei wird die Geometrie des Referenzmoduls angenommen. Für eine Modulhöhe von 0,2 m liegt die Membranfläche in diesem Fall um ca. 30.000 m<sup>2</sup> über der Membranfläche bei einer Höhe von 2,8 m. Zwischen diesen Modulhöhen sinkt die Membranfläche im gleichen Maß wie die Modullänge. Die Schwankungen der Graphen bei Modulhöhen größer als 1,5 m sind durch Rundungen bei der Anzahl der Membranmodule zu erklären. Dieser Effekt wird ausführlich im Anhang 8.10 in Abbildung 8-15 erläutert. Unter Vernachlässigung dieses Effektes läuft die benötigte Membranfläche bei höheren Modulen gegen einen Grenzwert. Bei Variation der Modulhöhe ändert sich das Verhältnis von Membranfläche je Meter und eintretendem Feedstrom je Modul gemäß Abbildung 5-23 (rechts). Da die Anzahl der Feedkanäle um eins höher ist als die Anzahl der Membrantaschen, vervielfacht sich die Anzahl der Feedkanäle langsamer als die Anzahl der Taschen. Dieser Effekt macht sich vor allem bei kleinen Modulhöhen bemerkbar, da er in hohen beziehungsweise breiten Modulen mit mehr als 100 Membrantaschen vernachlässigbar ist. Bei kleinen Höhen ist das Verhältnis von Membranfläche je Meter zum Feedstrom am geringsten, sodass die Membranlänge erhöht werden muss, um den geforderten Abtrenngrad zu erreichen. Längere Module führen zu einem erhöhten Druckverlust und damit zu einer schlechteren Abtrennperformance, sodass die gesamte Membranfläche steigt. Folglich ist die Membranfläche bei kleinen Modulhöhen größer als bei hohen Modulen. Wird nur die Modulbreite bei gleicher Modulhöhe geändert, ist die benötigte Membranfläche für alle Breiten bis auf die durch die Rundung der Modulanzahl auftretenden Schwankungen gleich. Dies ist ebenfalls im Anhang 8.10 in Abbildung 8-15 dargestellt.

Bei der Variation der Modulhöhe für das hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierte Membranmodul ist die Auswirkung auf die Membranfläche vernachlässigbar, wie im Anhang 8.10 in Abbildung 8-16 dargestellt ist. Hier ergibt sich eine Differenz zwischen der Membranfläche für 0,2 m und 3 m hohe Module von 300 m<sup>2</sup>. Dies liegt daran, dass für diesen Fall bereits ein optimiertes Verhältnis von Membranfläche je Meter Modullänge und Feedstrom gefunden ist. Durch die reduzierten Ströme je Kanal fällt der Effekt, dass sich die Anzahl der Feedkanäle und die Anzahl der Membrantaschen ungleich vervielfachen, nicht so stark ins Gewicht. Das prinzipielle Verhalten ist jedoch auch beim optimierten Fall gleich.

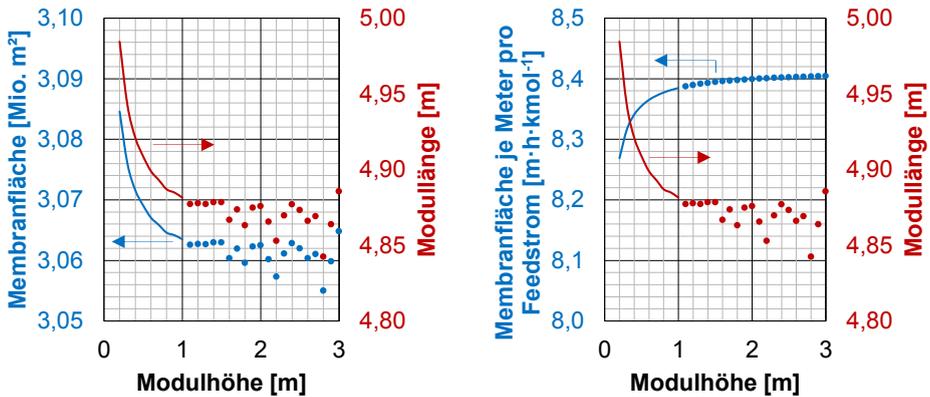


Abbildung 5-23: Auswirkungen der Variation der Modulhöhe bei konstantem Abtrenngrad der ersten Trennstufe des Referenzfalls auf die gesamte Membranfläche und die Modullänge (links) und Zusammenhang zwischen der Membranfläche je Meter bezogen auf den Feedstrom je Modul und der Modullänge (rechts)

Wird die Höhe der Membranmodule der ersten Trennstufe für das in den Gesamtprozess integrierte Modul variiert, ist die Abhängigkeit der benötigten Membranfläche für den Referenzfall und den optimierten Fall von der Modulhöhe ähnlich wie bei isolierter Betrachtung. Mit steigender Modulhöhe verringert sich für den Referenzfall die Membranfläche, wie in Abbildung 5-24 (links) dargestellt ist. Den gleichen Verlauf hat der Nettoverbrauch des  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses. Der Nettoverbrauch sinkt, da bei kleinerer Membranfläche in der ersten Trennstufe der Permeatstrom dieser Trennstufe kleiner ist und somit ein geringerer Volumenstrom vor Eintritt in die zweite Trennstufe komprimiert werden muss. Oberhalb einer Modulhöhe von 1 m ändern sich Membranfläche und Nettoverbrauch jedoch kaum noch. Hier treten lediglich Schwankungen aufgrund der Rundung der Anzahl an Membranmodulen auf. Dagegen ändert sich das Verhältnis von Membranfläche je Meter und Feedstrom je Modul nicht mehr merklich. Für den optimierten Fall sind Membranfläche und Nettoverbrauch über den gesamten Bereich an Modulhöhen nahezu konstant.

Die Abhängigkeit der Membranfläche und der Nettoleistung von der Modulhöhe spiegelt sich auch in den  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten wider, wie in Abbildung 5-24 (rechts) dargestellt ist. Während die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten für den Referenzfall zwischen einer Modulhöhe und Modulbreite von 0,2 m und 0,6 m leicht von  $68,4 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  auf  $68,0 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  fallen, bleiben sie bei größeren Modulhöhen nahezu konstant bei  $68,0 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Für die hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhen optimierte Modulgeometrie ergeben sich keine merklichen Änderungen in den  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten. Diese liegen konstant bei ca.  $57,2 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Somit kann für Modulhöhen größer als 0,6 m keine merkliche Abhängigkeit der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten von der Modulhöhe und Modulbreite festgestellt werden. Doch auch bei kleineren Modulhöhen ist der Einfluss der sich ändernden Membranfläche je Meter bezogen auf den Feedstrom gering, sodass auch Modulhöhen und Modulbreiten kleiner als 0,6 m hinsichtlich der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten gewählt werden können.

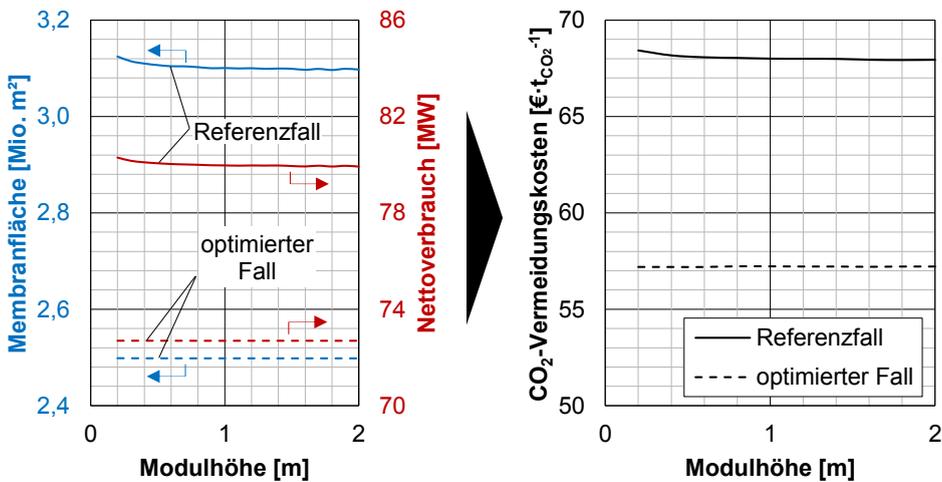


Abbildung 5-24: Gesamte Membranfläche und Nettoverbrauch (links) sowie CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten (rechts) des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses bei Variation der Modulhöhe in der ersten Trennstufe für den Referenzfall und den bezüglich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Fall

Die Auswirkungen der Variation der Modulhöhe in der zweiten Trennstufe auf die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten sind sehr gering. Zum einen ist die gesamte Membranfläche in der zweiten Trennstufe um den Faktor 50 kleiner als die Membranfläche der ersten Trennstufe, sodass sie nur einen geringen Anteil an der Investitionssumme der Membranmodule ausmacht. Zum anderen ändert sich der Nettoverbrauch des Abtrennprozesses um lediglich 23 kW im Referenzfall und 4 kW im optimierten Fall. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten können damit als nahezu unabhängig von der Modulhöhe und –breite der zweiten Trennstufe gesehen werden.

### 5.6.2 Packungsdichte und Anzahl der Membranmodule

Da die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten nahezu unabhängig von der Modulhöhe sind, werden weiterhin neben den Kosten die Abmessungen des Membranmoduls als solches als Entscheidungskriterium für die Bestimmung der Modulhöhe und Modulbreite betrachtet. Es wird eine möglichst hohe Packungsdichte angestrebt, wobei gleichzeitig eine gewisse Anzahl an Membranmodulen erhalten bleiben soll, damit die Vorteile der modularen Bauweise für Instandhaltungsarbeiten und die Flexibilität im Betrieb erhalten bleiben.

Der Verlauf der Packungsdichte der Module der ersten Trennstufe für verschiedene Modulhöhen ist in Abbildung 5-25 (links) dargestellt. Dabei werden die Packungsdichten des gesamten Moduls und des Membranstapels ohne Zu- und Ablaufbereich für den Referenzfall und den optimierten Fall verglichen. Zur Berechnung der Packungsdichte wird angenommen, dass der Zu- beziehungsweise Ablaufbereich eine konstante Länge von 0,5 m beziehungsweise 0,2 m hat. Der Durchmesser der Anschlussrohre ist so gewählt, dass in den Rohren eine Strömungsgeschwindigkeit von 10 m·s<sup>-1</sup> nicht überschritten wird. Die Rohre selbst zählen nicht mehr zum Membranmodul und damit nicht mehr zum verbauten Raum. Dagegen wird das Modulgehäuse mit den in Kapitel 5.1 festgelegten Wandstärken von 3 mm in der ersten Trennstufe beziehungsweise 8 mm in der zweiten Trennstufe dem verbauten Raum

angerechnet. Die Reduktion der Membranfläche durch die Aussparungen für die Permeatrohre werden in den Simulationen in Aspen Plus® zur Vereinfachung nicht berücksichtigt. Zur Bestimmung der Packungsdichte wird jede Tasche um die durch die Permeatrohre wegfallende Membranfläche verlängert. Die Breite der thermischen Verschweißung der Membrantaschen von 5 mm wird ebenfalls bei der Berechnung der Gehäuselänge und -breite berücksichtigt.

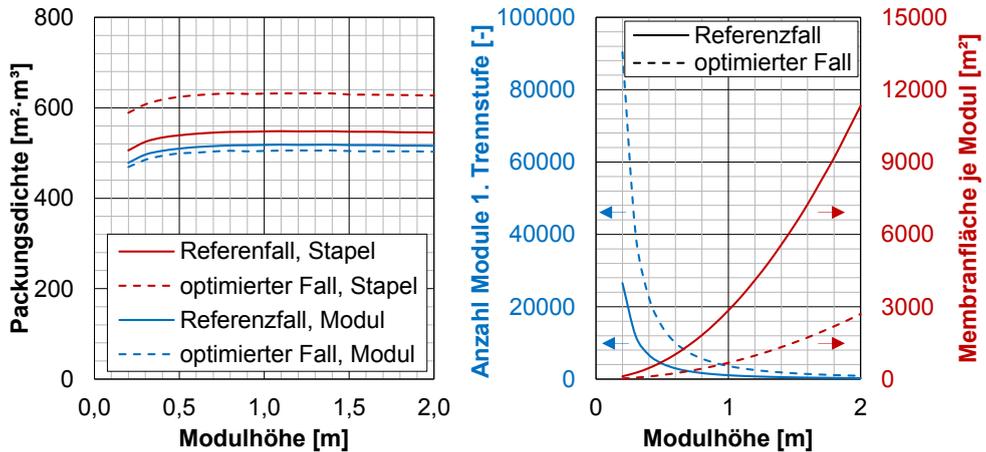


Abbildung 5-25: Packungsdichte (links) sowie Anzahl der Module und Membranfläche je Modul in der ersten Trennstufe (rechts) bei Variation der Modulhöhe beziehungsweise -breite in der ersten Trennstufe für den Referenzfall und den bezüglich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Fall

Die Verläufe der Packungsdichten in Abhängigkeit der Modulhöhe haben ein Maximum bei einer Modulhöhe von 1,1 m bis 1,2 m und fallen für höhere Module leicht ab. Die maximale Packungsdichte des gesamten Moduls liegt für den Referenzfall bei ca.  $518 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  bei einer Modulhöhe von 1,1 m und für den optimierten Fall bei ca.  $506 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  bei einer Modulhöhe von 1,2 m. Für kleinere Module wächst der verbaute Raum für höhere Module langsamer als die Membranfläche, sodass die Packungsdichte bis zum Maximum ansteigt. Die sinkende Packungsdichte bei höheren Membranmodulen korreliert mit dem steigenden Anteil inaktive Membranfläche bei der Fertigung einer Membrantasche. Die inaktive Membranfläche ist diejenige Membranfläche, die zwar hergestellt wird, jedoch nicht trennaktiv eingesetzt wird, da sie für die Permeatrohre herausgetrennt oder durch thermische Verschweißung an den Taschenrändern inaktiv wird. Ihr Anteil beträgt bei einer Modulhöhe von 1,1 m im Referenzfall 2,8 % und steigt auf 3,9 % für eine Modulhöhe von 2 m an. Im optimierten Fall liegt der Anteil inaktiver Membranfläche bei einer Modulhöhe von 1,2 m bei 4,2 % und steigt auf 5,3 % für eine Modulhöhe von 2 m. Somit ist ein immer größerer Anteil des verbauten Raums innerhalb des Membranstapels nicht mit aktiver Membranfläche belegt. Im optimierten Fall fällt mehr Verschnitt an als im Referenzfall, da die Modullänge dort geringer ist. Da gleichzeitig durch die Optimierung der Kanalhöhen und der Eintrittsgeschwindigkeit die benötigte aktive Membranfläche um 19,4 % reduziert werden kann, wird für den Fall, dass die Modulhöhe 2 m beträgt, immer noch 18,3 % weniger Membranfläche hergestellt als im Referenzfall.

Die Packungsdichte des Moduls für den optimierten Fall ist kleiner als die Packungsdichte des Moduls des Referenzfalls. Dies liegt daran, dass das optimierte Modul kürzer ist als das Referenzmodul und somit der verbaute Raum des Zu- und Ablaufbereichs, in dem keine Membranfläche verbaut ist, mehr ins Gewicht fällt. Der Anteil des Volumens des Zu- und Ablaufbereichs am gesamten verbauten Raum liegt im Referenzfall bei ca. 5,4 % und im optimierten Fall bei ca. 20 %. Die Tatsache, dass die Kanalhöhen im optimierten Fall mit 1 mm beziehungsweise 2 mm kleiner sind als im Referenzfall mit 2 mm und 1,5 mm, wird durch diesen Effekt mehr als kompensiert. Allerdings sorgen die kleineren Kanalhöhen im optimierten Fall dafür, dass die Packungsdichte des Membranstapels mehr als 15 % beziehungsweise  $80 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  über der Packungsdichte des Membranstapels des Referenzfalls liegt. Bei den Packungsdichten des Membranstapels wird der Zu- und Ablaufbereich nicht zum verbauten Raum gezählt, sodass diese Packungsdichten größer als diejenigen des gesamten Membranmoduls sind.

Die Packungsdichte der Module der zweiten Trennstufe ist – wie im Anhang 8.10 in Abbildung 8-17 (links) dargestellt – mit maximal  $415 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  bei einer Modulhöhe von 1,1 m im Referenzfall niedriger als in der ersten Trennstufe. Dies liegt wiederum an der Kürze der Module bei gleichzeitig hohem Volumenstrom im Permeat, durch den die zwei parallelen Permeatrohre bei einer Modulhöhe von 2 m mit einem Durchmesser von je 420 mm entsprechend groß dimensioniert sind. Allerdings ist die Packungsdichte im optimierten Fall besser als im Referenzfall mit maximal  $450 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  bei einer Modulhöhe von 0,8 m. Hier macht sich die niedrigere Kanalhöhe im Vergleich zum Referenzfall bemerkbar, da einerseits der Membranstapel kompakter wird, andererseits die Durchmesser der Anschlussrohre aufgrund der höheren Anzahl an Modulen im optimierten Fall kleiner werden.

Die Anzahl der Membranmodule und die Membranfläche je Modul sind für den Referenzfall und den optimierten Fall in Abbildung 5-25 (rechts) dargestellt. Für eine Modulhöhe und -breite von 0,2 m müssen im Referenzfall ca. 26.500 Membranmodule und im optimierten Fall sogar knapp 90.400 Membranmodule für die erste Trennstufe bereitgestellt werden, um den gesamten Volumenstrom zu bearbeiten. Der Volumenstrom je Modul ist bei dem hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Modul geringer als im Referenzfall, da die Eintrittsgeschwindigkeit und die Feedkanalhöhe geringer sind. Für höhere Module sinkt die Anzahl benötigter Membranmodule stark ab. Bereits bei einer Modulhöhe von 1 m sind nur noch 1080 Module im Referenzfall und 3630 Module im optimierten Fall parallel zu schalten. Bei einer Modulhöhe von 2 m reduziert sich die Anzahl der Module auf 269 und 908 für den Referenzfall beziehungsweise optimierten Fall. Selbst bei dieser Modulhöhe sind somit noch genügend Membranmodule parallel geschaltet, um einen flexiblen Einsatz bei sich ändernden Bedingungen zu gewährleisten.

Die Membranfläche je Modul für den Referenzfall liegt bei 0,2 m Modulhöhe bei  $116 \text{ m}^2$ , für 1 m Höhe bei  $2850 \text{ m}^2$  und für 2 m Höhe bei  $11.330 \text{ m}^2$ . Dagegen ist in einem Modul im optimierten Fall eine Membranfläche von  $27,5 \text{ m}^2$  bei 0,2 m Modulhöhe, von  $675 \text{ m}^2$  für 1 m Höhe und von  $2700 \text{ m}^2$  für 2 m Höhe verbaut. Im Falle eines Defekts einer Membran bei einer Modulhöhe von 2 m im Referenzfall müssten somit, da der gesamte Taschenstapel ersetzt werden müsste,  $11.330 \text{ m}^2$  ausgetauscht werden. Dadurch fallen bei dem Wechsel eines Taschenstapels allein durch die Investitionssumme – also ohne Berücksichtigung der Personalkosten – Kosten in Höhe von ca. 570.000 € an. Für den optimierten Fall liegt die Investitionssumme der Membrantaschen eines Moduls für eine Modulhöhe von 2 m bei 135.000 €. Unter diesem Gesichtspunkt ist es sinnvoll, die Modulhöhe und -breite kleiner als 2 m zu wählen, um die Membranfläche je Modul zu reduzieren.

In der zweiten Trennstufe sind aufgrund der geringeren Feedströme weniger Membranmodule nötig, wie in Abbildung 8-17 (rechts) gezeigt wird. Es wird festgelegt, dass für eine ausreichend modulare Betriebsweise mindestens 100 Membranmodule parallel geschaltet werden müssen und die Membranfläche je Modul gleichzeitig maximal bei 2000 m<sup>2</sup> liegt. Die zweite Bedingung folgt wieder der Argumentation, dass Module mit einer größeren verbauten Membranfläche bei Ersatz des Membranstapels zu hohe Investitionssummen haben. Dadurch ergeben sich zwei einzuhaltende Grenzen für die maximale Modulbreite, die in Abbildung 8-17 (rechts) durch den farbigen Hintergrund hervorgehoben sind. Während für den Referenzfall die Modulhöhe durch diese Forderung auf maximal 1,6 m beschränkt ist, ist die Modulhöhe im optimierten Fall diesbezüglich nicht limitiert.

### 5.6.3 Auslegung der Anschlussrohre

Die Modulhöhe bestimmt die Membranfläche sowie den Volumenstrom je Modul. Für eine definierte Strömungsgeschwindigkeit innerhalb der Anschlussrohre wird mit diesem Volumenstrom der Durchmesser der Anschlussrohre festgelegt. Gleichzeitig wird die Packungsdichte und der Anteil der inaktiven Membranfläche bei der Herstellung der Membrantasche von dem Volumenstrom je Modul beeinflusst. Je mehr Rohre parallel den Permeatstrom abführen, desto kleiner ist der Durchmesser jedes Rohres. Durch eine erhöhte Anzahl paralleler Permeatrohre wird die Strömung in den Membrantaschen gleichmäßiger über die Taschenbreite verteilt. Allerdings steigen mit einer erhöhten Anzahl an Permeatrohren der konstruktive Aufwand und damit die Herstellkosten je Modul. Weiterhin steigt der Druckverlust in den Rohren mit sinkendem Durchmesser, aber gleichzeitig ist der Anteil des Durchmessers der Permeatrohre an der gesamten Taschenlänge geringer. Daher wird im Folgenden untersucht, wie viele Rohre bei welcher Modulhöhe hinsichtlich Packungsdichte, Strömung innerhalb der Membrantaschen und Druckverlust in den Permeatrohren optimal sind.

Die vereinfachte Geometrie einer Membrantasche ist in Abbildung 5-26 dargestellt.

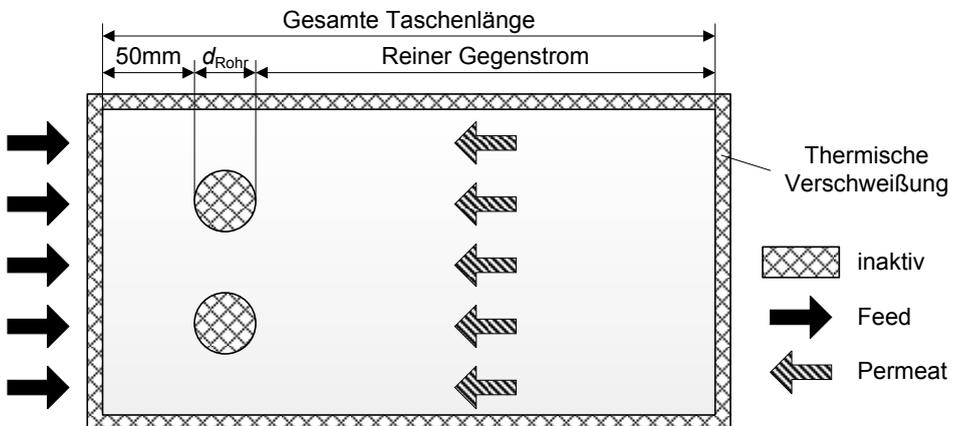


Abbildung 5-26: Vereinfachte Darstellung einer Membrantasche mit zwei Permeatrohren mit Visualisierung der inaktiven Membranfläche sowie dem Bereich, in dem das Membranmodul im reinen Gegenstrom betrieben wird

Rund herum sind jeweils zwei Membranflächen thermisch miteinander verschweißt. Es wird angenommen, dass zwischen Anfang der trennaktiven Fläche und Anfang der Permeatrohre 50 mm Platz gelassen wird, damit die Membrantasche nicht einreißt und Dichtungs- sowie Drainageringe, die um die Permeatrohre liegen, ausreichend Platz haben. Der Durchmesser der Permeatrohre  $d_{\text{Rohr}}$  ergibt sich aus der Strömungsgeschwindigkeit in den Rohren und der Anzahl der Rohre. Wie bereits erwähnt, wird die Taschenlänge soweit verlängert, dass die fehlende Membranfläche durch die Aussparung für die Permeatrohre ausgeglichen wird. Damit ergibt sich die gleiche trennaktive Membranfläche wie in der Auslegung durch die Prozesssimulationen in Aspen Plus®. Hinter den Permeatrohren wird die Membrantasche bis zum Ende im Gegenstrom angeströmt. Die thermische Verschweißung und die Aussparung für die Permeatrohre werden als inaktive Membranfläche der hergestellten Membranfläche gewertet. Sowohl die Packungsdichte als auch der Anteil inaktiver Membranfläche sind unabhängig von der Anzahl der Permeatrohre, da die Fläche der Aussparung für die Membranmodule bei gleicher Strömungsgeschwindigkeit gleich bleibt.

Im Folgenden wird neben der zulässigen Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  auch eine Variante mit einer zulässigen Geschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  angenommen um den Effekt niedriger Strömungsgeschwindigkeiten zu verdeutlichen. In Abbildung 5-27 ist die Packungsdichte und der Anteil der inaktiven Membranfläche für die beiden zulässigen Strömungsgeschwindigkeiten in den Anschlussrohren für die erste und zweite Trennstufe dargestellt. Der Verlauf der Packungsdichte entspricht jenem aus Abbildung 5-25 (links) und verhält sich umgekehrt proportional zum Anteil inaktiver Membranfläche. Für eine zulässige Geschwindigkeit in den Anschlussrohren von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ist die Packungsdichte in der ersten Trennstufe um ca.  $9 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  bis  $30 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  höher als für eine Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , da die Durchmesser der Anschlussrohre kleiner sind. In der zweiten Trennstufe liegt der Unterschied bei  $16 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  bis  $60 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$ .

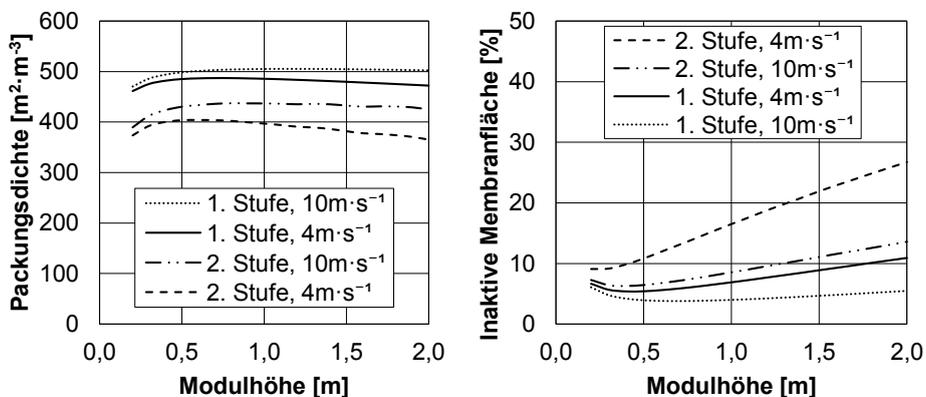


Abbildung 5-27: Packungsdichte (links) und inaktive Membranfläche bei der Herstellung der Membrantaschen (rechts) der Membranmodule in der ersten und zweiten Trennstufe des optimierten Falls für verschiedene Modulhöhen und einer Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$

Gleichzeitig sinkt der Anteil der inaktiven Membranfläche. Dieser liegt für eine Modulhöhe von 2 m bei ca. 10,7 % in der ersten Trennstufe für eine Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und bei ca. 5,4 % für eine Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . In der zweiten Trennstufe sind bei einer Modulhöhe von 2 m für eine Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  beziehungsweise  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  26,7 % und 13,5 % der hergestellten Membranfläche nicht trennaktiv. Die inaktive Membranfläche ist für kleinere Modulhöhen geringer. In der ersten Trennstufe beträgt er für eine Modulhöhe von 1 m lediglich 6,9 % und 4 % bei einer Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  beziehungsweise  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Bei einer Modulhöhe von unter 0,4 m steigt der Anteil der inaktiven Membranfläche wieder an, da hier die Membrantaschen klein werden und der Anteil der thermischen Verschweißung an den Membrantaschen zunimmt.

Damit der Vorteil durch den Gegenstrombetrieb in den Membranmodulen ausgenutzt werden kann, ist der Durchmesser der Permeatrohre so zu wählen, dass ein möglichst großer Anteil der Membrantasche im reinen Gegenstrom angeströmt wird. Dieser Bereich des reinen Gegenstrombetriebs liegt – wie in Abbildung 5-26 verdeutlicht – hinter den Permeatrohren. Da der Abstand der Permeatrohre zum Anfang der Membrantasche und die Gesamtlänge der Membrantasche vorgegeben sind, wird dieser Anteil allein durch den Durchmesser der Permeatrohre beeinflusst. Für ein, zwei und drei Permeatrohre und zulässige Strömungsgeschwindigkeiten in den Anschlussrohren von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  variieren die Durchmesser der Permeatrohre bei Änderung der Modulhöhe gemäß Abbildung 5-28. Je größer ein einzelnes Membranmodul ist, desto größer ist der Permeatstrom je Modul. Damit steigt der Durchmesser der Permeatrohre für eine vorgegebene Strömungsgeschwindigkeit.

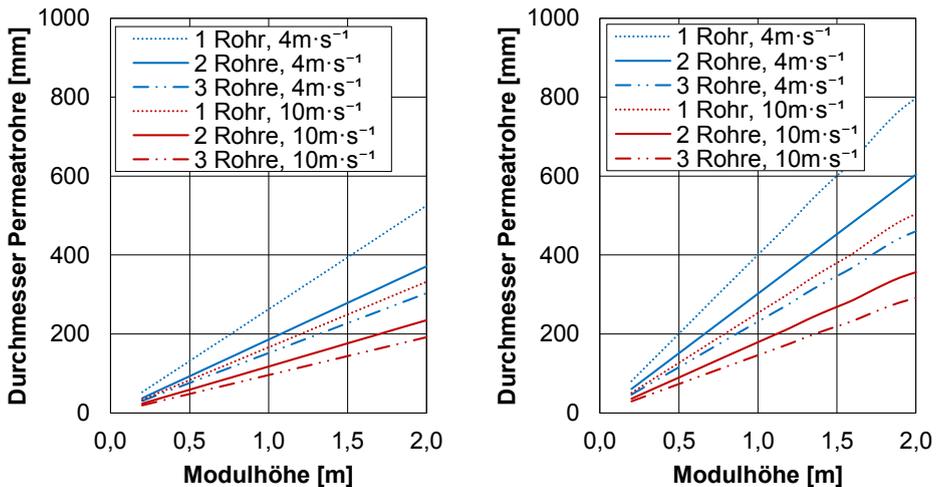


Abbildung 5-28: Durchmesser der Permeatrohre in der ersten Trennstufe (links) und in der zweiten Trennstufe (rechts) für ein, zwei und drei Permeatrohre und zulässige Strömungsgeschwindigkeiten in den Anschlussrohren von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe

Für höhere Geschwindigkeiten oder eine höhere Anzahl paralleler Permeatrohre werden die Permeatrohre kleiner dimensioniert. In der zweiten Trennstufe ist der Volumenstrom je Modul größer, da die Eintrittsgeschwindigkeit des Feedstroms in den Membranstapel bei  $1,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  statt bei  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  liegt. Demnach sind die Durchmesser der Permeatrohre in der zweiten

Trennstufe gemäß Abbildung 5-28 (rechts) größer als in der ersten Trennstufe (links). Ein analoges Verhalten bei Variation der Modulhöhe zeigen auch die Durchmesser des Zulaufrohres gemäß Abbildung 8-18 (links) im Anhang 8.10. Hier ist die Anzahl der Rohre jedoch auf eins begrenzt. Mit steigender Modulhöhe vergrößert sich zwar der Durchmesser des Zulaufrohres, aber die Querschnittsfläche des Membranstapels vergrößert sich ebenfalls, wohingegen die Länge der Querschnittserweiterung konstant bei 0,5 m bleibt. Somit steigt auch der Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung mit höheren Modulen gemäß Abbildung 8-18 (rechts) im Anhang 8.10.

Abbildung 5-29 stellt den Anteil des Membranmoduls dar, welcher im reinen Gegenstrom betrieben wird, in Abhängigkeit der Modulhöhe für ein, zwei und drei Permeatrohre bei Strömungsgeschwindigkeiten in den Permeatrohren von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Als Restriktion wird eingeführt, dass mehr als 75 % der gesamten Taschenlänge im reinen Gegenstrom angeströmt werden. Dieser Bereich ist durch den grauen Hintergrund in Abbildung 5-29 markiert. Mit steigender Modulhöhe – also steigendem Volumenstrom je Modul – wird der Bereich mit reinem Gegenstrombetrieb kleiner. Für eine Modulhöhe von 0,2 m liegt der Anteil des Moduls mit reinem Gegenstrombetrieb für alle Konfigurationen aus Strömungsgeschwindigkeit und Anzahl der Permeatrohre über 90 %. Dagegen erfüllt bei einer Modulhöhe von 2 m nur noch die Konfiguration mit drei Permeatrohren und einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  die Bedingung, dass mindestens 75 % des Membranmoduls im reinen Gegenstrom betrieben werden. Je mehr Permeatrohre parallel vorgesehen sind, desto kleiner ist der Durchmesser eines einzelnen Rohres und damit steigt der Bereich mit reinem Gegenstrombetrieb. Eine höhere Geschwindigkeit reduziert zusätzlich den Durchmesser der Permeatrohre, sodass drei Permeatrohre mit einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  den Anteil im reinen Gegenstrom maximieren. Für eine Modulhöhe von 1 m scheidet die Variante mit einem Permeatrohr und einer Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  aus. Dies zeigt, dass diese Abschätzung der zulässigen Strömungsgeschwindigkeit zum Ausschluss einzelner Fertigungsalternativen führt.

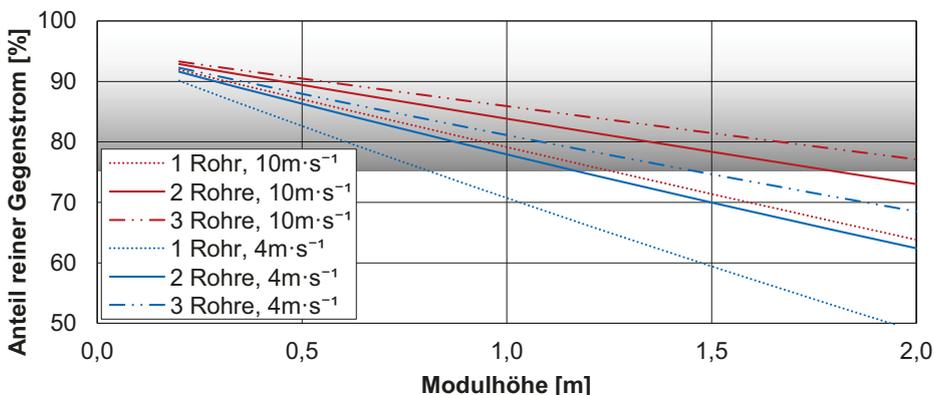


Abbildung 5-29: Anteil der Länge, die im reinen Gegenstrom betrieben werden kann, an der Gesamtlänge der Membrantasche für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten in den Permeatrohren von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  sowie  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe in der ersten Trennstufe

In der zweiten Trennstufe haben die Membranmodule eine Länge von 0,77 m bis 0,97 m. Gleichzeitig sind die Volumenströme je Modul im Permeat höher als in der ersten Trennstufe, sodass die Durchmesser der Permeatrohre um ca. 30 % bis 40 % größer sind. Daher sinkt der Anteil im reinen Gegenstrombetrieb mit Steigerung der Modulhöhe stärker ab als in der ersten Trennstufe, wie im Anhang 8.10 in Abbildung 8-19 dargestellt ist. Für eine Modulhöhe von 2 m kann keine Konfiguration aus Strömungsgeschwindigkeit und Anzahl der Permeatrohre die Bedingung erfüllen, dass 75 % des Membranmoduls im reinen Gegenstrom betrieben werden. Bei Verwendung eines einzigen Permeatrohrs und einer Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  beträgt der Durchmesser des Rohrs 0,8 m während die gesamte Tasche eine Länge von 0,98 m hat. Wird eine Modulhöhe von 1 m gewählt ist nur eine Kombination aus drei Rohren mit einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  möglich. Allerdings liegt der Anteil für zwei Permeatrohre bei der gleichen Strömungsgeschwindigkeit bei ca. 71 %, sodass in diesem Fall der konstruktive Aufwand bei der Verwendung von drei Permeatrohren nicht im Verhältnis zur Verbesserung der Abtrennperformance steht.

Der Druckverlust in den Permeatrohren ist im Anhang 8.10 in Abbildung 8-20 dargestellt. Er liegt im extremen Fall mit einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und einem Rohrdurchmesser von 20 mm bei ca.  $26 \text{ Pa}\cdot\text{m}^{-1}$  in der ersten Trennstufe. In der zweiten Trennstufe fällt der Druck bei 3 Permeatrohren mit je 30 mm Durchmesser um  $68 \text{ Pa}\cdot\text{m}^{-1}$ , wenn diese mit einer Geschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  durchströmt werden. Diese Druckverluste sind niedriger als in den Permeatkanälen. In den Permeatkanälen liegt der Druckverlust je Meter Kanallänge bei  $55 \text{ Pa}\cdot\text{m}^{-1}$  in der ersten Trennstufe und  $531 \text{ Pa}\cdot\text{m}^{-1}$  in der zweiten Trennstufe. Da die Permeatrohre in einem Sammelrohr mit einem deutlich größeren Durchmesser münden und somit nur wenige Meter lang sind, sind die Druckverluste in den Permeatrohren vernachlässigbar. Hinsichtlich des Druckverlustes sind drei Permeatrohre, die mit einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  durchströmt werden, geeignet für den Abzug des Permeatstroms. Eine Verringerung der Strömungsgeschwindigkeit oder der Anzahl der Permeatrohre mindert den Druckverlust, sodass alle anderen Kombinationen aus Strömungsgeschwindigkeit und Anzahl der Permeatrohre hinsichtlich des Druckverlustes noch besser sind.

#### 5.6.4 Auswahl der Modulhöhe und Modulbreite

Für Modulhöhen unter 0,5 m weichen die ansonsten nahezu konstanten  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten im Referenzfall aufgrund des geringeren Verhältnisses von Membranfläche je Meter Modullänge und Feedstrom je Modul um ca.  $0,4 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  nach oben ab. Für den optimierten Fall liegen die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten für jede Modulhöhe bei  $57,2 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Die Packungsdichte eines Membranmoduls in der ersten Trennstufe ist für eine Höhe von 1,1 m im Referenzfall mit  $518 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  und für eine Modulhöhe von 1,2 m im optimierten Fall mit  $506 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  maximal. Sind die Membranmodule höher als 0,5 m, ändert sich die Packungsdichte im Vergleich zum Maximum nur unwesentlich. Dabei liegt die Packungsdichte des optimierten Falls für jede Modulhöhe um ca.  $9 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  bis  $13 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$  unter der Packungsdichte des Referenzfalls, da die Module dort kürzer sind. Für kleine Modulhöhen passt nur eine geringe Membranfläche in ein Modul, sodass viele Module parallel geschaltet werden müssen. Die Membranfläche pro Modul steigt für eine Modulhöhe von 2 m auf  $11.330 \text{ m}^2$  und  $2700 \text{ m}^2$  für den Referenzfall beziehungsweise den optimierten Fall an. Dadurch ergeben sich Investitionssummen von ca. 0,57 Mio. € beziehungsweise 0,13 Mio. € für die Neuanschaffung eines Membranstapels, wenn eine Verschlechterung der Abtrennperformance aufgrund eines Schadens an einer Membran festgestellt wird. Bezüglich dieses Risikos sind kleinere Modulgrößen zu bevorzugen. Für höhere Module steigen der Volumenstrom je Modul und damit der Durchmesser der Permeatrohre. Dies verringert den Anteil des Membranmoduls, der im

reinen Gegenstrom betrieben wird. Dieser Anteil wird mit höheren zulässigen Strömungsgeschwindigkeiten und mit Erhöhung der Anzahl der Permeatrohre vergrößert. Aus den genannten Gründen sind Modulhöhen und Modulbreiten von 0,5 m bis 1 m optimal. Die Modulhöhe und Modulbreite der ersten Trennstufe werden auf 0,5 m festgelegt. Für diese Abmessungen erweisen sich für zulässige Strömungsgeschwindigkeiten in den Permeatroyhren von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  zwei Permeatrohre als sinnvoller Kompromiss zwischen konstruktivem Aufwand und optimierter Strömungsführung. Der Durchmesser der Permeatrohre liegt bei einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei je 80 mm. Das Zulaufrohr hat bei einer Modulhöhe von 0,5 m einen Durchmesser von ca. 100 mm für eine Strömungsgeschwindigkeit von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Für eine zulässige Strömungsgeschwindigkeit im Zulaufrohr von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  verringert sich der notwendige Durchmesser auf 60 mm. Der Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung beträgt bei einer angenommenen Länge der Querschnittserweiterung von 500 mm ca.  $47^\circ$  für eine zulässige Strömungsgeschwindigkeit im Zulaufrohr von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Bei Variation der Modulhöhe der zweiten Trennstufe ändern sich die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten nicht. Die Packungsdichte hat bei 1,1 m im Referenzfall und bei 0,8 m im optimierten Fall ihr Maximum und ist im optimierten Fall größer. Weiterhin weicht die Packungsdichte für den optimierten Fall für eine Modulhöhe von 0,5 m bis 1 m nur unwesentlich von der maximalen Packungsdichte ab. Für eine ausreichend flexible, modulare Betriebsweise wird festgelegt, dass mindestens 100 Membranmodule parallel geschaltet werden, sodass die maximale Modulhöhe bei 1 m liegt. Damit das Membranmodul jedoch ausreichend im reinen Gegenstrom betrieben werden kann, ist ein kleineres Modul zu bevorzugen. Daher wird auch für die zweite Trennstufe eine Modulhöhe und Modulbreite von 0,5 m festgelegt. Auch hier sichern zwei Permeatrohre eine optimierte Strömungsführung innerhalb der Membrantaschen bei gleichzeitig vertretbarem konstruktivem Aufwand. Das Zulaufrohr der zweiten Trennstufe hat bei der Modulhöhe von 0,5 m und einer zulässigen Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  einen Durchmesser von ca. 100 mm. Damit beträgt der Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung  $44^\circ$ .

### 5.7 Variation von Prozessparametern und Randbedingungen

In diesem Kapitel wird vermittelt, wie sich andere als die in der vorliegenden Arbeit angenommenen Prozessparameter und Randbedingungen auf die optimale Modulgeometrie und Modulverschaltung auswirken. Dabei werden Änderungen im Prozess, in den Membraneigenschaften und in dem Kraftwerksbetrieb beispielhaft untersucht. Dazu wird in Kapitel 5.7.1 die Triebkraft in der ersten Trennstufe manipuliert, da eine Änderung in dieser Trennstufe den Gesamtprozess stärker beeinflusst. Werden in Zukunft die Membraneigenschaften durch neue Membranmaterialien verbessert, ergeben sich ebenfalls andere Bedingungen in den Trennstufen. Diese werden in Kapitel 5.7.2 beleuchtet. Die Auslegung des Abtrennprozesses ergibt eine benötigte Anzahl parallel geschalteter Membranmodule in beiden Trennstufen für den Vollastbetrieb des Kraftwerks. Wird dieses jedoch in Teillast betrieben, ändern sich die Eigenschaften des Rauchgases und damit die Randbedingungen des Abtrennprozesses. Um die gleiche Produktqualität auch im Teillastbetrieb zu erzielen, sind Anpassungen im Betrieb des Equipments des Abtrennprozesses notwendig, die in Kapitel 5.7.3 analysiert werden.

#### 5.7.1 Variation der Triebkraft in der ersten Trennstufe

Ändert sich die Triebkraft aufgrund geänderter Drücke im Feed oder Permeat, gelten für die sich ergebenden Permeationsraten andere optimale Verhältnisse der Kanalhöhen und optimale Geschwindigkeiten. Bei höheren Volumenströmen im Permeat bringt unter Umständen zusätzlich die Unterteilung des Membranmoduls in Kompartimente einen Vorteil hinsichtlich

der spezifischen Membranfläche. Beispielhaft wird im Folgenden die Triebkraft in der ersten Trennstufe variiert, indem der Feeddruck erhöht oder der Permeatdruck verringert werden. Es wird angenommen, dass der gleiche Abtrenngrad wie im optimierten Fall von 78,2 % erreicht werden soll. Auf eine Integration dieser Trennstufe in den in der vorliegenden Arbeit angenommenen CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess wird an dieser Stelle verzichtet, da vorrangig qualitative Aussagen bezüglich der Änderung der Modulgeometrie getroffen werden sollen.

In Abbildung 5-30 ist für verschiedene Drücke auf der Feed- und Permeatseite die jeweils optimale Eintrittsgeschwindigkeit und die jeweils optimale Kombination aus Kanalhöhen der Feed- und Permeatkanäle dargestellt. Analog zu den Analysen, die durch Abbildung 5-10 visualisiert werden, wird die Eintrittsgeschwindigkeit in den Taschenstapel der Membranmodule der ersten Trennstufe variiert und die spezifische Membranfläche bestimmt. Die Eintrittsgeschwindigkeit, die zu der geringsten spezifischen Membranfläche führt, ist die optimale Geschwindigkeit für eine Kombination aus Kanalhöhen.

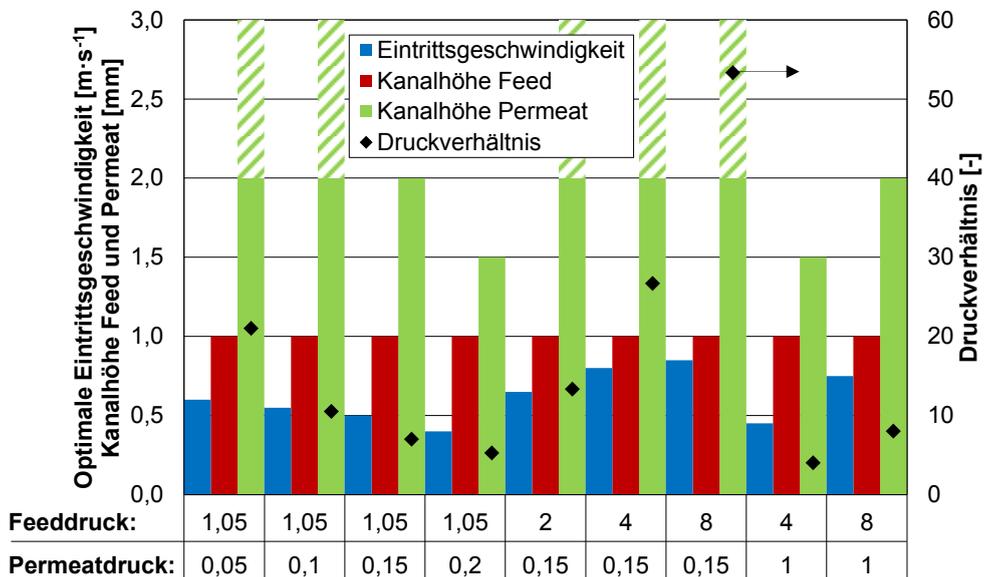


Abbildung 5-30: Optimale Eintrittsgeschwindigkeit und Höhen der Feed- und Permeatkanäle in der ersten Trennstufe für unterschiedliche Drücke auf der Feed- und Permeatseite sowie Druckverhältnisse der Varianten; Drücke in bar

Diese Analyse wird für unterschiedliche Kanalhöhen durchgeführt. Dabei werden nur Kombinationen von Kanalhöhen betrachtet, in denen der Permeatkanal höher als der Feedkanal ist, da diese Voraussetzung, wie in Kapitel 5.3.2 gezeigt wird, stets zu einer Verbesserung der Abtrennperformance führt. Für alle Varianten werden zunächst Kanalhöhen im Permeat von 2 mm und 3 mm angenommen. Erweist sich eine Kanalhöhe von 2 mm als vorteilhaft, wird geprüft, ob eine weitere Reduzierung auf 1,5 mm ebenfalls eine verbesserte Abtrennperformance bewirkt. Die optimale Eintrittsgeschwindigkeit variiert für die eingestellten Druckverhältnisse zwischen 0,4 m·s<sup>-1</sup> und 0,85 m·s<sup>-1</sup>. Generell gilt, dass die optimale Eintrittsgeschwindigkeit größer ist, je besser die Abtrennperformance in Form der spezifischen

Membranfläche ist. Wird der Feeddruck beispielsweise konstant auf 1,05 bar gehalten und der Permeatdruck von 0,2 bar auf 0,05 bar gesenkt, steigt die optimale Eintrittsgeschwindigkeit an. Dies ist damit zu erklären, dass bei erhöhter Triebkraft die Permeationsrate pro Membranfläche ansteigt und somit die Konzentrationserhöhung der bevorzugt zurückgehaltenen Komponente an der Membranoberfläche der Feedseite zunimmt. Dies erhöht den Effekt der Konzentrationspolarisation, sodass eine Steigerung der Geschwindigkeit vorteilhaft ist. Das gleiche Verhalten ergibt sich bei höheren Feeddrücken, wenn der Permeatdruck konstant bei 0,15 bar gehalten wird. Dagegen nimmt bei kleinen Druckverhältnissen die Bedeutung des Druckverlustes bei der Wahl der optimalen Eintrittsgeschwindigkeit zu. Dies begründet die niedrige optimale Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,45 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  derjenigen Variante, bei der der Feeddruck 4 bar und der Permeatdruck 1 bar betragen.

Die Kanalhöhe der Feedkanäle wird bei 1 mm beibehalten, um eine möglichst große Packungsdichte bei gleichzeitig vertretbarem Druckverlust zu gewährleisten. Dagegen ist die Höhe der Permeatkanäle abhängig von dem Druckverhältnis. Je niedriger das Druckverhältnis ist, desto ähnlicher sind die Strömungsbedingungen auf beiden Seiten der Membran, sodass sich die Kanalhöhen ebenfalls annähern. Für ein Druckverhältnis unter 7 erweist sich eine Kanalhöhe im Permeat von 1,5 mm als vorteilhaft. Eine Kanalhöhe von 2 mm ergibt im Vergleich bei jeweils optimaler Eintrittsgeschwindigkeit die niedrigste spezifische Membranfläche, wenn das Druckverhältnis zwischen 7 und 10 liegt. Bei größeren Druckverhältnissen ergibt eine Kanalhöhe von 3 mm einen leichten Vorteil in der spezifischen Membranfläche. Dieser ist jedoch so gering, dass die absolute Membranfläche zum Erreichen eines Abtrenngrades von 78,2 % maximal um 0,6 % reduziert werden kann, wenn die Kanalhöhe von 2 mm auf 3 mm erhöht wird. Dabei verringert sich bei Steigerung der Kanalhöhe in den Permeatkanälen um 1 mm die Packungsdichte des Membranstapels um ca. 25 %. Daher ist es in diesen Fällen sinnvoll, von der berechneten optimalen Kanalhöhe von 3 mm abzuweichen und die Kanalhöhe im Permeat auf 2 mm festzulegen. Diese Korrektur ist durch die schraffierten Flächen in Abbildung 5-30 angedeutet.

Die Unterteilung des Membranmoduls in mehrere Kompartimente bei geänderten Druckverhältnissen wird für zwei Varianten mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten in den Permeatkanälen untersucht. Dies vergrößert den Druckverlust im Permeatkanal, sodass eine Reduzierung der Kanallänge vorteilhaft ist. Die erste Variante ist jene mit dem geringsten Permeatdruck von 0,05 bar bei einem Feeddruck von 1,05 bar, bei der die Dichte des Permeatstroms am geringsten ist. Bei der anderen Variante ist die Strömungsgeschwindigkeit im Permeatkanal aufgrund der hohen Permeationsrate groß. In dieser Variante beträgt der Feeddruck 8 bar und der Permeatdruck 0,15 bar. Für den hinsichtlich der Kanalhöhen optimierten Fall liegen die spezifischen Membranflächen bei Erhöhung der Anzahl an Kompartimenten über denjenigen des Membranmoduls mit einem Kompartiment, wie im Anhang 8.10 in Abbildung 8-13 gezeigt wird. Bei der analogen Darstellung für einen Permeatdruck von 0,05 bar in Abbildung 5-31 liegen die Graphen für ein, zwei und drei Kompartimente nahe beieinander. Für Eintrittsgeschwindigkeiten unter  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ist der Unterschied der spezifischen Membranflächen nicht signifikant. Die Unterteilung in Kompartimente bringt einen Vorteil für höhere Strömungsgeschwindigkeiten.

Hohe Druckverhältnisse verringern die spezifische Membranfläche und steigern die Permeationsrate. Die Druckverluste verlieren an Einfluss auf die Triebkraft, da der Anteil des Druckverlustes am Gesamtdruck bei einem Feeddruck von 8 bar vernachlässigbar ist. Daher bringt die Unterteilung des Membranmoduls in Kompartimente, wie in Abbildung 5-31 dargestellt, keinen signifikanten Unterschied im Vergleich zum Membranmodul mit einem Kompartiment.

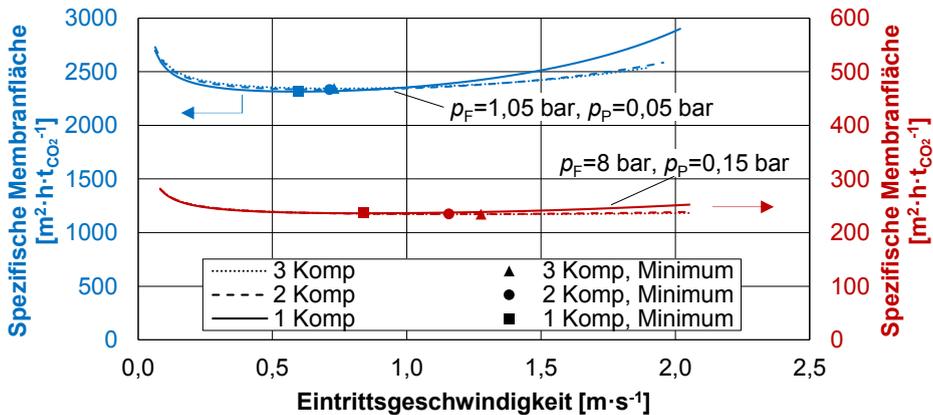


Abbildung 5-31: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei und drei Kompartimente (Komp) in der ersten Trennstufe; Kanalhöhen: 1 mm im Feed, 2 mm im Permeat; Markierungen geben das jeweilige Minimum der spezifischen Membranfläche für ein, zwei und drei Kompartimente an

Für ein Kompartiment ist die spezifische Membranfläche auch bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  mit  $250 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  lediglich um  $15 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  höher als im Optimum. Eine Unterteilung des Membranmoduls in zwei oder drei Kompartimente verschiebt die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten zu  $1,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  beziehungsweise  $1,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , bei denen die benötigte spezifische Membranfläche jeweils ca.  $234 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  beträgt. Auch hier steigt bei höheren Eintrittsgeschwindigkeiten die spezifische Membranfläche nur unwesentlich an. Dies bedeutet, dass die Membranmodule bei hohen Druckverhältnissen mit Geschwindigkeiten über  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  durchströmt werden können, ohne die Abtrennperformance merklich zu beeinflussen. Dadurch und durch die höhere Dichte aufgrund des erhöhten Feeddruckes steigt der Volumenstrom je Modul, sodass weniger Module parallel geschaltet werden müssen. Bei Eintrittsgeschwindigkeiten unterhalb von  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  reduziert die Konzentrationspolarisation die Triebkraft, sodass die spezifische Membranfläche ansteigt. Insgesamt mindert die Unterteilung in Kompartimente die spezifische Membranfläche um  $13 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Allerdings steigt der konstruktive Aufwand durch die Unterteilung, da mehr Permeatrohre angeschlossen und diese jeweils gegen die Feedkanäle abgedichtet werden müssen.

Wie in Kapitel 5.5 gezeigt wird, ist für hohe Druckverhältnisse der Betrieb des Membranmoduls im Gleichstrom für Abtrenngrade unter 50 % dank des Spülgaseffektes durch den permeierten Wasserdampf vorteilhaft. Dagegen wird für den Abtrenngrad von 78,2 % auch bei einem Druckverhältnis von 53,3 – also einem Feeddruck von 8 bar und einem Permeatdruck von 0,15 bar – im Gleichstrombetrieb eine größere Membranfläche benötigt als im Gegenstrombetrieb. Selbst wenn das Membranmodul in zwei Kompartimente unterteilt wird, von denen nur das erste Kompartiment im Gleichstrom betrieben wird, kann keine Steigerung in der Abtrennperformance erzielt werden.

Mit erhöhter Triebkraft steigt der abzuleitende Permeatstrom je Modul an, da bei gleichem Abtrenngrad der Volumenstrom je Modul durch die höhere Dichte und die höhere Eintrittsgeschwindigkeit größer ist. Dementsprechend sind die Permeatrohre zu dimensionieren, wenn eine bestimmte Strömungsgeschwindigkeit in den Permeatöhrchen eingehalten werden soll. In Abbildung 5-32 sind die wesentlichen Auslegungsparameter für eine Strömungsgeschwindigkeit in den Permeatöhrchen von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe dargestellt. Es wird angenommen, dass der Feeddruck 8 bar und der Permeatdruck 0,15 bar betragen.

Während der Anteil der inaktiven Membranfläche bei Drücken von 1,05 bar im Feed und 0,15 bar im Permeat für jede Modulhöhe bei unter 10 % liegt, liegt der minimale Anteil inaktiver Membranfläche für das Druckverhältnis von 53,3 bereits bei 12,8 % für eine Modulhöhe von 0,2 m. Bei Annahme einer Modulhöhe von 2 m sind ca. 44 % der hergestellten Membranfläche inaktiv. Dieser Anteil steigt mit höheren Membranmodulen, da die benötigte Fläche der Aussparung für die Permeatrohre in jeder Membrantasche schneller wächst als die Membranfläche der Tasche. Damit einher geht auch eine Verringerung der Packungsdichte mit höheren Modulen. Die Forderung, dass mindestens 75 % des Membranmoduls im reinen Gegenstrom betrieben werden, ist bei hohen Permeationsraten nur noch für Modulhöhen unter 0,5 m einzuhalten. Wird nur ein Permeatrohr verwendet und eine Modulhöhe von 2 m angenommen, ist der Volumenstrom je Modul im Permeat so groß, dass der Durchmesser des Permeatrohres die Länge des Membranmoduls übersteigt, wenn eine Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  eingehalten werden soll. Entweder müsste die zulässige Strömungsgeschwindigkeit in den Permeatöhrchen weiter erhöht werden oder diese Modulhöhe ist technisch so nicht realisierbar. Der Anteil, bei dem das Membranmodul im Gegenstrom betrieben wird, ist gemäß Abbildung 5-26 als Differenz aus Modullänge und Durchmesser der Permeatrohre abzüglich 50 mm definiert. Daher ergibt sich gemäß Abbildung 5-32 bei einer Modulhöhe von 2 m ein negativer Anteil, der im reinen Gegenstrom betrieben werden kann, bei Verwendung eines Permeatrohres.

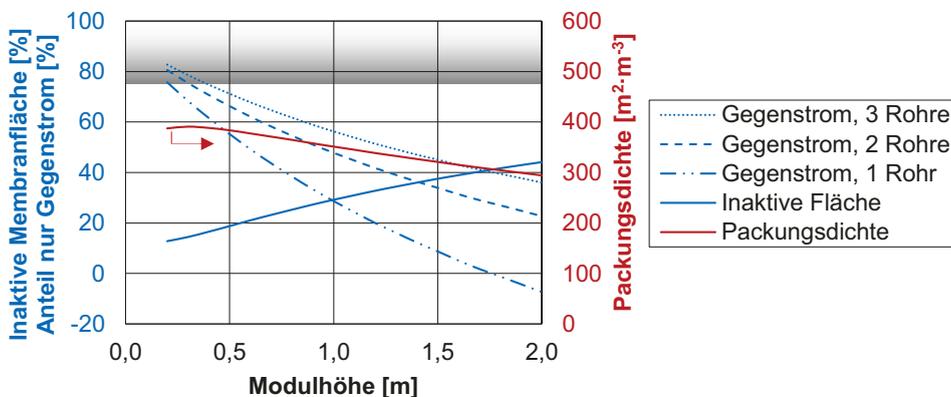


Abbildung 5-32: Inaktive Membranfläche und Packungsdichte sowie der Anteil der Länge, die im reinen Gegenstrom betrieben werden kann, an der Gesamtlänge der Membrantasche für ein, zwei und drei Permeatrohre bei Variation der Modulhöhe in der ersten Trennstufe; Eintrittsgeschwindigkeit:  $0,85 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren:  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Drücke: 8 bar im Feed, 0,15 bar im Permeat; Schattierung markiert den Bereich, bei dem mehr als 75 % des Moduls im reinen Gegenstrom betrieben werden

## 5.7.2 Variation der Membraneigenschaften

Die Forschung bezüglich der Membranmaterialien für das Post-Combustion Capture ist darauf gerichtet, die CO<sub>2</sub>-Permeanz zu erhöhen und gleichzeitig die Selektivität gegenüber anderen Komponenten des Rauchgases beizubehalten oder zu vergrößern. Andere Permeanzen führen zu geänderten Permeationsraten und beeinflussen damit die optimale Modulgeometrie. Beispielhaft werden im Folgenden vier Szenarien mit veränderten Permeanzen untersucht. Die CO<sub>2</sub>-Permeanz wird von 3 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> auf 4 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> und 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> erhöht. Gleichzeitig werden jeweils die Permeanzen der übrigen Gase beibehalten oder so verändert, dass die CO<sub>2</sub>-Selektivitäten gegenüber diesen Komponenten gleich bleiben. Der CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess wird mit in beiden Trennstufen geänderten Permeanzen simuliert. Dabei werden simultan die Eintrittsgeschwindigkeiten in beiden Trennstufen variiert. Die optimale Kombination der Eintrittsgeschwindigkeiten beider Trennstufen minimiert die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten. In Tabelle 5-3 sind die Ergebnisse dieser Optimierungen für jedes Szenario der veränderten Permeanzen angegeben.

Tabelle 5-3: Parameter des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses bei Variation der Permeanzen der Membran für den jeweils hinsichtlich der Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall

CO <sub>2</sub> -Permeanz	*	3	4	4	6	6
Permeanzen restl. Komponenten**	*	Polyactive <sup>®</sup> , Tabelle 2-1	Polyactive <sup>®</sup> , Tabelle 2-1	Hoch**	Polyactive <sup>®</sup> , Tabelle 2-1	Hoch**
Optimale Geschwindigkeit 1. Trennstufe	m·s <sup>-1</sup>	0,5	0,6	0,65	0,75	0,85
Optimale Geschwindigkeit 2. Trennstufe	m·s <sup>-1</sup>	1,1	1	1,15	1	1,5
Abtrenngrad 1. Trennstufe	%	78,2	75,1	78,3	72,8	78,4
Abtrenngrad 2. Trennstufe	%	65,2	77,3	64,9	87,3	64,4
Membranfläche	Mio. m <sup>2</sup>	2,5	2,04	1,89	1,64	1,28
Nettoverbrauch	MW	72,7	66,1	72,9	61,3	73,3
Wirkungsgradverlust	%-Pkt.	6	5,46	6,02	5,07	6,06
<b>CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten</b>	€·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup>	<b>57,2</b>	<b>48,4</b>	<b>51,9</b>	<b>41,81</b>	<b>46,7</b>

\* Permeanzen in m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup>

\*\* Selektivitäten von Polyactive<sup>®</sup> aus Tabelle 2-1

Mit steigender Permeanz sind höhere Eintrittsgeschwindigkeiten in beiden Trennstufen optimal. Dies liegt, wie bereits bei den in Kapitel 5.7.1 beschriebenen Untersuchungen zur erhöhten Triebkraft, an dem wachsenden Einfluss der Konzentrationspolarisation auf die Triebkraft. Je höher die Permeationsraten sind, desto stärker nimmt der Stoffmengenanteil der bevorzugt permeierenden Komponente an der Membranoberfläche auf der Feedseite ab. Höhere Geschwindigkeiten sorgen für einen besseren Stofftransport zur Membran und mindern somit die Konzentrationspolarisation. In der ersten Trennstufe steigt die optimale Eintrittsgeschwindigkeit von 0,5 m·s<sup>-1</sup> für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 3 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> auf

0,85 m·s<sup>-1</sup> für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> an. In der zweiten Trennstufe ist für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> eine Eintrittsgeschwindigkeit von 1,5 m·s<sup>-1</sup> statt 1,1 m·s<sup>-1</sup> optimal. Werden die Permeanzen der übrigen Komponenten so angepasst, dass die Selektivitäten gleich bleiben, ist ihre Permeationsrate ebenfalls erhöht. Dadurch verdünnen sie das Permeat, sodass der CO<sub>2</sub>-Partialdruck auf der Permeatseite verringert wird. Es wird eine niedrigere Membranfläche benötigt, als in den Varianten, in denen nur die CO<sub>2</sub>-Permeanz erhöht wird. Für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> werden durch diese Verdünnungswirkung 0,36 Mio. m<sup>2</sup> der Membranfläche eingespart. Dies zeigt, dass eine Erhöhung der Selektivität der Membran nicht unbedingt die Membranfläche minimiert. Im Vergleich zu der Auslegung mit den Membraneigenschaften von Polyactive® verringert sich die Membranfläche um 1,22 Mio. m<sup>2</sup> bei Verdoppelung aller Permeanzen.

Eine erhöhte Selektivität sorgt allerdings dafür, dass der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeatstrom erhöht ist. Dadurch kann der Abtrenngrad der zweiten Trennstufe erhöht werden ohne die geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% im CO<sub>2</sub>-Produktstrom zu unterschreiten. Dies entlastet die erste Trennstufe, sodass der Abtrenngrad dort gesenkt werden kann. Der verringerte Abtrenngrad in der ersten Trennstufe sorgt in Kombination mit der geringeren Verdünnung des Permeatstroms dafür, dass der Massenstrom des Permeats der ersten Trennstufe reduziert ist. Diese senkt die Leistung, die der Verdichter vor der zweiten Trennstufe benötigt, um den Feed auf 4 bar zu verdichten. Damit liegt der Nettoverbrauch bei einer CO<sub>2</sub>-Permeanz von 4 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> und erhöhten Selektivitäten um 6,8 MW niedriger als im Falle gleicher Selektivitäten. Für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> ergibt sich sogar ein Unterschied von 12 MW im Nettoverbrauch. Durch die erhöhten CO<sub>2</sub>-Permeanzen bei gleichen Permeanzen der übrigen Komponenten wird somit der Wirkungsgradverlust auf 5,46 %-Punkte für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 4 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> und auf 5,07 %-Punkte für eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> reduziert. Bei gleichbleibenden Selektivitäten ändern sich der Abtrenngrad in der ersten Trennstufe und damit der Nettoverbrauch bei Änderung der CO<sub>2</sub>-Permeanz nicht signifikant. Der Nettoverbrauch liegt unter Annahme der Membraneigenschaften von Polyactive® bei 72,7 MW und bei einer CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> und gleicher Selektivität bei 73,3 MW.

Die Einsparung an Membranfläche sorgt in allen Fällen mit erhöhter CO<sub>2</sub>-Permeanz für eine Verringerung der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten. Wird nur die CO<sub>2</sub>-Permeanz verbessert und die übrigen Permeanzen beibehalten, ist zwar eine höhere Membranfläche notwendig als im Fall beibehaltener Selektivitäten, aber der Nettoverbrauch des Abtrennprozesses wird reduziert. Dies führt insgesamt zu niedrigeren CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten, wenn nur die CO<sub>2</sub>-Permeanz erhöht wird. Für den Fall, dass die CO<sub>2</sub>-Permeanz 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> beträgt, verringern sich die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten von 46,7 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> auf 41,81 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>, wenn eine alleinige Erhöhung der CO<sub>2</sub>-Permeanz durch verbesserte Membranmaterialien erreicht werden kann. Im Vergleich zu der Verwendung von Polyactive® können mit neuen Membranmaterialien, die eine CO<sub>2</sub>-Permeanz von 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> haben, die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten um bis zu 15,39 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> reduziert werden.

Eine erhöhte CO<sub>2</sub>-Permeanz bei gleichzeitig konstanten Permeanzen der übrigen Komponenten senkt den Spülgaseffekt des Wasserdampfes, sodass der Betrieb des Membranmoduls im Gleichstrom keine Verbesserung der Abtrennperformance bringt. Werden die Selektivitäten konstant gehalten, erhöhen sich die Permeationsraten aller Komponenten um den gleichen Anteil, sodass die Ergebnisse der in Kapitel 5.5 vorgestellten Analyse zum Vergleich des Gleichstrom- und Gegenstrombetriebs gelten. Die Auslegung der Permeatrohre für erhöhte Permeanzen liefert analoge Ergebnisse wie bei Erhöhung der Triebkraft, da in

beiden Fällen die Permeationsraten und die Volumenströme je Modul im Permeat steigen. Daher kann auf diese Untersuchungen zurückgegriffen werden.

### 5.7.3 Teillastverhalten des Abtrennprozesses

Der membranbasierte  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess muss auch bei Teillastbetrieb die für den Transport erforderliche  $\text{CO}_2$ -Reinheit erfüllen. Wie in Kapitel 2.5.2 erläutert, verringert sich bei Teillastbetrieb der Stoffmengenstrom des Rauchgases und dessen Zusammensetzung ändert sich. Der Abtrennprozess ist auf 100 % Nennleistung ausgelegt. Aus der kostenoptimierten Auslegung ergeben sich festgelegte Membranflächen je Trennstufe und eine maximale Anzahl zur Verfügung stehender Membranmodule. Bei reduziertem Volumenstrom und der aktiven Membranfläche des Auslegungsfalls stellt sich ein erhöhter Abtrenngrad bei gleichzeitig verringerter  $\text{CO}_2$ -Reinheit ein. Somit ist für den Teillastbetrieb die Außerbetriebnahme einiger Module unumgänglich, um die  $\text{CO}_2$ -Reinheit von 95,5 mol-% einzuhalten. Daher wird in folgendem Kapitel die kostenoptimierte Verschaltung der Module in beiden Trennstufen bei Teillastbetrieb bestimmt.

In einem ersten Schritt werden gemäß der in Kapitel 2.5.2 beschriebenen Methodik der für die jeweilige Teillast auftretende Rauchgasstrom und dessen Zusammensetzung bestimmt. Dazu wird das Luftverhältnis der Feuerung für verschiedene Teillast-Betriebspunkte aus den in Abbildung 5-33 dargestellten  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteilen des Rauchgases berechnet, wobei eine Kohle mit der im Anhang 8.3 in Tabelle 8-2 aufgelisteten Zusammensetzung zugrunde gelegt wird. Bei dieser Ermittlung werden die in Kapitel 2.5.2 angegebenen Randbedingungen – Wasserdampf-Sättigung bei 50 °C und 9 % Falschluff im Luftvorwärmer – angewandt. Diese Luftverhältnisse werden auf die Feuerung mit der Steinkohle „Kleinkopje“, die die in Tabelle 8-2 angegebene Zusammensetzung hat, übertragen und die Rauchgaszusammensetzung je Kilogramm verbrannter Kohle bestimmt. Mit den elektrischen Nettowirkungsgraden bei Teillastbetrieb aus [64], die Abbildung 5-33 zu entnehmen sind, wird der Kohlemassenstrom und damit der Rauchgasstoffmengenstrom berechnet. In [64] wird ebenfalls das Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen als Berechnungsgrundlage gewählt. Es ist zu beachten, dass in [64] die thermische Leistung statt wie in der vorliegenden Arbeit die elektrische Leistung als Referenz für den Teillastbetrieb gewählt wird.

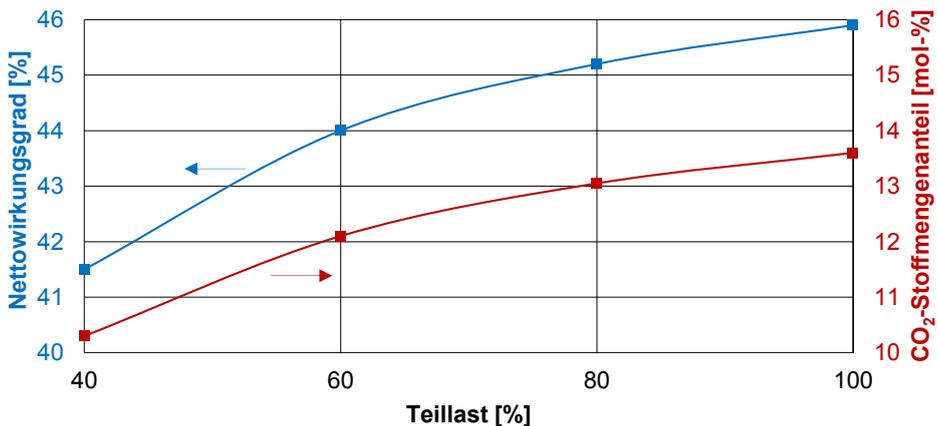


Abbildung 5-33: Nettowirkungsgrad des RKW NRW ohne  $\text{CO}_2$ -Abtrennung und  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil des Rauchgases bei Teillast; Daten aus [64]

Bei Feuerung mit der Steinkohle „Kleinkopje“ ergeben sich die in Tabelle 5-4 gelisteten Kraftwerksparameter bei Volllast – also einer elektrischen Nettoleistung von 555 MW<sub>el</sub> – und bei 80 %, 60 % und 40 % Teillast. Die resultierenden Stoffmengenanteile der Rauchgas-komponenten sind Abbildung 5-34 zu entnehmen.

Tabelle 5-4: Kraftwerksparameter zur Bestimmung des Rauchgasstroms bei Volllast nach [16; 30; 64] sowie bei 40 %, 60 % und 80 % Teillast

Teillast	%	40	60	80	100
Thermische Leistung	MW <sub>th</sub>	535	757	982	1210
Nettoleistung	MW <sub>el</sub>	222	333	444	555
Nettowirkungsgrad, ohne CCUS	%	41,5	44	45,2	45,9
Luftverhältnis der Feuerung	-	1,4	1,25	1,17	1,15
Massenstrom Kohle	kg·s <sup>-1</sup>	21,4	30,3	39,3	48,4
Stoffmengenstrom Rauchgas	kmol·h <sup>-1</sup>	38.320	48.515	58.395	70.670
Produziertes CO <sub>2</sub>	t <sub>CO<sub>2</sub></sub> ·h <sup>-1</sup>	185	262	340	420
Minimaler CO <sub>2</sub> -Abtrenngrad*	%	32	52	63	70

\* Abtrenngrad, bei dem die CO<sub>2</sub>-Emissionen den CO<sub>2</sub>-Emissionen bei Volllast entsprechen

Der Stoffmengenstrom des Rauchgases verringert sich bei 40 % Teillast gegenüber dem Strom bei Volllast um 45,8 % von 70.670 kmol·h<sup>-1</sup> auf 38.320 kmol·h<sup>-1</sup>. Gleichzeitig sinkt jedoch der Stoffmengenanteil CO<sub>2</sub> im Rauchgas von 13,5 mol-% auf 11 mol-%, sodass der CO<sub>2</sub>-Partialdruck auf der Feedseite und damit die Triebkraft des CO<sub>2</sub> verringert werden. Während die Stoffmengenanteile des Stickstoffs, des Wasserdampfes und des Argons im Rauchgas nahezu unverändert bleiben, steigt der Stoffmengenanteil des Sauerstoffs von 3,7 mol-% auf 6,4 mol-% bei Reduzierung der Last auf 40 % der Nettonennleistung.

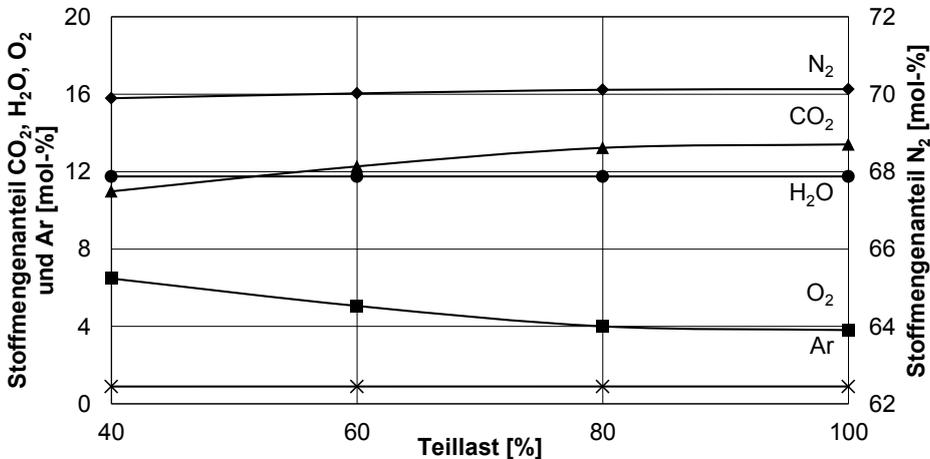


Abbildung 5-34: Zusammensetzung des Rauchgases bei Volllast sowie bei 40 %, 60 % und 80 % Teillast

Trotz der sich ändernden Bedingungen am Eintritt in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess durch den Teillastbetrieb muss gewährleistet werden, dass die CO<sub>2</sub>-Reinheit mindestens 95,5 mol-% beträgt und höchstens so viel CO<sub>2</sub> wie bei Volllast emittiert wird. Aus der zweiten Forderung resultiert ein in Tabelle 5-4 angegebener minimaler Abtrenngrad in Abhängigkeit des Teillast-Betriebspunktes, der den gleichen CO<sub>2</sub>-Emissionen wie bei Volllast entspricht. Für die vier Teillast-Betriebspunkte werden mögliche Kombinationen aus betriebenen Membranmodulen in der ersten und zweiten Trennstufe ermittelt, sodass diese Bedingungen erfüllt sind. Dabei steht maximal die aus der Auslegung des optimierten Falls bei Volllast bestimmte Anzahl an Membranmodulen zur Verfügung. Um die Anzahl möglicher Kombinationen aus aktiven Membranmodulen in der ersten und zweiten Trennstufe für die Analyse des Teillastbetriebs zu begrenzen, wird in dieser Analyse eine Modulhöhe und –breite von 1 m angenommen. Für diese Modulhöhe und –breite stehen im Vergleich zu der in Kapitel 5.6.4 ausgewählten Modulhöhe und –breite von 0,5 m exakt 25 %<sup>11</sup> der Membranmodule in beiden Trennstufen maximal zur Verfügung. In der ersten Trennstufe sind dies 3626 Membranmodule und in der zweiten Trennstufe sind es 99 Membranmodule. Nach der Analyse kann die resultierende Anzahl aktiver Membranmodule für verschiedene Teillast-Betriebspunkte mit vier multipliziert werden und es ergibt sich die Verschaltung für eine Modulhöhe und –breite von 0,5 m ohne das Ergebnis zu verfälschen. Die drei Grenzwerte für die Bestimmung der möglichen Kombinationen von Modulen bei Teillastbetrieb – minimale CO<sub>2</sub>-Reinheit, minimaler CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad und maximale Anzahl an Membranmodulen – sind in Abbildung 5-35 gestrichelt dargestellt. Die farbigen Flächen deuten den Bereich an, in dem die jeweilige Größe liegen darf.

Beispielhaft ist in Abbildung 5-35 die Ermittlung der möglichen Verschaltungen der Membranmodule bei 40 % Teillast dargestellt. Systematisch wird die Anzahl der parallel betriebenen Module in der zweiten Trennstufe herabgesetzt und für jede dieser Konfigurationen die Anzahl der Membranmodule in der ersten Trennstufe variiert. Übersteigt der Abtrenngrad den minimalen Abtrenngrad und übertrifft gleichzeitig die CO<sub>2</sub>-Reinheit den Zielwert von 95,5 mol-%, ist eine mögliche Verschaltung gefunden, falls die maximale Anzahl von 3626 Modulen in der ersten Trennstufe nicht überschritten wird. Für 40 % Teillast ist eine Reduzierung auf 20 bis 40 betriebene Module in der zweiten Trennstufe möglich. Werden nur 10 Module in der zweiten Trennstufe eingesetzt, kann der minimale Abtrenngrad nicht eingehalten werden. Werden weniger als 1700 Module in der ersten Trennstufe eingesetzt, ist der Abtrenngrad in dieser Stufe zu gering, um den geforderten Prozessabtrenngrad von ca. 32 % zu erreichen. Für mehr als 1700 Module in der ersten Trennstufe steigt die Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle der zweiten Trennstufe auf über 10 m·s<sup>-1</sup>, sodass dort die Triebkraft nicht ausreicht, um den Prozessabtrenngrad zu erlangen. Die minimale CO<sub>2</sub>-Reinheit wird für 50 Module in der zweiten Trennstufe erst erreicht, wenn mehr als 3800 Module in der ersten Trennstufe parallel betrieben würden. Da jedoch nur 3626 Module zur Verfügung stehen, ist diese Modulverschaltung nicht möglich.

---

<sup>11</sup> Mit doppelter Modulhöhe und –breite umfasst jedes Membranmodul die vierfache Membranfläche, sodass nur ein Viertel der Module benötigt werden um den gleichen Feedstrom zu bearbeiten.

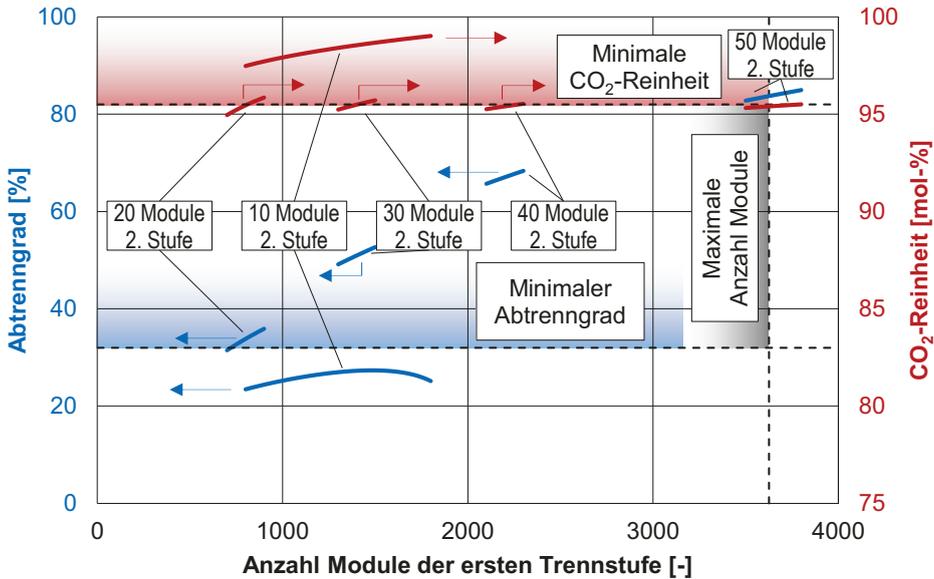


Abbildung 5-35: Abtrenngrad und CO<sub>2</sub>-Reinheit bei Variation der Anzahl an Membranmodulen der ersten Trennstufe und Grenzen zur Einhaltung der CO<sub>2</sub>-Reinheit und der emittierten Menge CO<sub>2</sub> bei 40 % Teillast für 10, 20, 30, 40 und 50 Module in der zweiten Trennstufe

Je mehr Membranmodule in der zweiten Trennstufe aktiv sind, desto mehr Module müssen in der ersten Trennstufe in Betrieb sein, damit die minimale CO<sub>2</sub>-Reinheit erfüllt ist. Damit steigt gleichzeitig der Abtrenngrad an. Wird mehr CO<sub>2</sub> abgetrennt, müssen weniger Zertifikate ersteigert werden. Allerdings ändert sich auch der Nettoverbrauch mit steigendem Stoffmengenstrom im Permeat der ersten und zweiten Trennstufe. Zur Auswahl des unter ökonomischen Gesichtspunkten optimierten Betriebs der CO<sub>2</sub>-Abtrennung bei Teillast werden die spezifischen variablen Kosten für den Brennstoff und den Erwerb von CO<sub>2</sub>-Zertifikaten je Kilowattstunde für jede mögliche Modulverschaltung bestimmt und diese minimiert. Das Ergebnis für die verschiedenen Teillast-Betriebspunkte ist in Abbildung 5-36 dargestellt. Für unterschiedliche Quantitäten an Membranmodulen in der zweiten Trennstufe ergibt sich jeweils eine Anzahl an Membranmodulen in der ersten Trennstufe, die die Anforderungen für den Teillastbetrieb erfüllt. Diese Modulanzahl ist für 40 % Teillast aus Abbildung 5-35 abzulesen. Analog wird auch die Anzahl der Membranmodule der ersten Trennstufe für 60 % und 80 % Teillast bestimmt. Die zugehörigen spezifischen variablen Kosten sind ebenfalls in Abbildung 5-36 aufgetragen. Die Modulverschaltung mit den geringsten spezifischen variablen Kosten ist durch die gestrichelten schwarzen Pfeile hervorgehoben.

Bei 40 % Teillast steigen die spezifischen variablen Kosten an, je mehr Module in beiden Trennstufen in Betrieb sind. Zwar sinken dort die spezifischen Zertifikatkosten, allerdings steigt der Nettoverbrauch von 16 MW auf 40 MW an, wenn 40 Module statt 20 Module in der zweiten Trennstufe aktiv sind. Da bei 40 % Teillast die Nettoleistung bei nur 222 MW liegt, haben die spezifischen Brennstoffkosten je Kilowattstunde produziertem Strom einen Anteil von 80 % bis 90 % an den gesamten spezifischen variablen Kosten und beeinflussen diese maßgeblich. Somit wird für 40 % Teillast die Verschaltung mit 811 Modulen in der ersten

Trennstufe und 20 Modulen in der zweiten Trennstufe gewählt. In den anderen Teillast-Betriebspunkten sind die spezifischen Brennstoffkosten weniger sensitiv gegenüber der Modulverschaltung. Die spezifischen Zertifikatkosten nehmen jedoch mit zunehmendem Abtrenngrad und damit mit einer höheren Anzahl aktiver Module ab. Durch die höheren Rauchgasmengen bei höherer Last des Kraftwerks steigt die Anzahl der Membranmodule, die in Betrieb sein müssen, an. Gleichzeitig verschiebt sich die kostenoptimierte Verschaltung zu höheren Modulanzahlen innerhalb des möglichen Kombinationsbereichs. Beispielsweise ist für 80 % Teillast aus den möglichen Kombinationen an Membranmodulen diejenige kostenminimal, bei der die meisten Module in der ersten und zweiten Trennstufe aktiv sind. Die Graphen der Anzahl an Modulen in der ersten Trennstufe für 60 % und 80 % Teillast weisen Minima auf. Für Kombinationen von aktiven Membranmodulen links des Minimums ist das Kriterium des minimalen Abtrenngrades das Ausschlaggebende. Steigt die Anzahl der Membranmodule in der zweiten Trennstufe weiter an, begrenzt das Kriterium der minimalen  $\text{CO}_2$ -Reinheit die Wahl der Kombination.

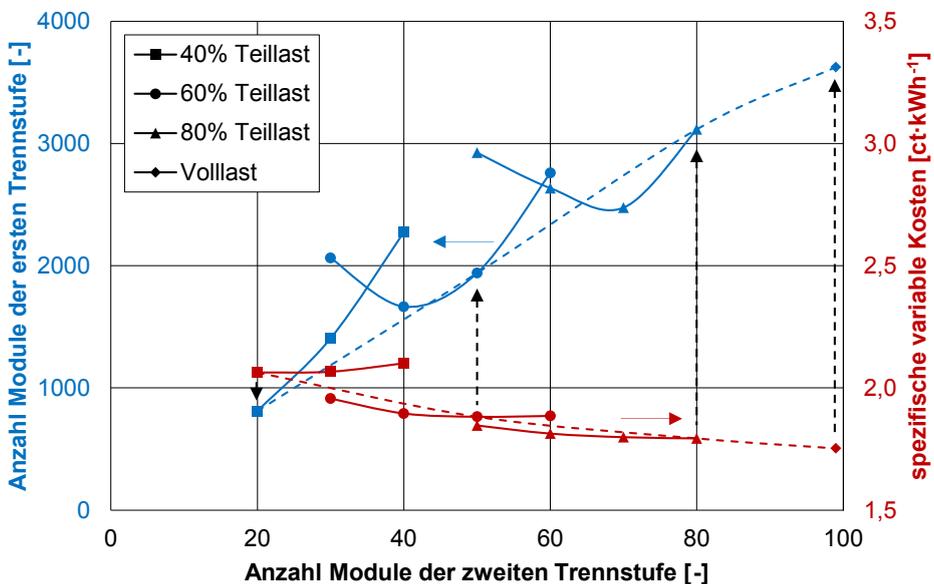


Abbildung 5-36: Hinsichtlich spezifischer variabler Betriebskosten optimierte Modulverschaltung der ersten und zweiten Trennstufe für Teillast-Betriebspunkte von 40 %, 60 % und 80 % sowie Volllast bei einer Modulhöhe von 1 m

Die kostenoptimierten Verschaltungen und die zugehörigen Kennwerte des Kraftwerksprozesses sind in Tabelle 5-5 aufgeführt. Die Anzahl der aktiven Module wird wieder auf die Modulhöhe von 0,5 m umgerechnet. Mit steigender Last steigt auch der Nettowirkungsgrad des Kraftwerks mit CCUS an. Dies führt zu einer Reduzierung der spezifischen Brennstoffkosten. Gleichzeitig wird ein größerer Anteil des entstehenden  $\text{CO}_2$  aus dem Kraftwerksrauchgas abgetrennt. Somit sinken die spezifischen Zertifikatkosten. Damit sind die sinkenden spezifischen variablen Kosten mit höherer Nettoleistung des Kraftwerks zu erklären. Diese liegen bei Betrieb des Kraftwerks mit 40 % Teillast bei  $2,06 \text{ ct}\cdot\text{kWh}^{-1}$ . Bei Volllast betragen die Kosten für den Erwerb der  $\text{CO}_2$ -Zertifikate und die Brennstoffkosten zusammen  $1,75 \text{ ct}$  je Kilowattstunde produzierten Strom. Der Anteil aktiver Module an der Anzahl gebau-

ter Module sinkt generell stärker als die Last. So liegt der Anteil aktiver Membranmodule beispielsweise bei 40 % Teillast bei nur 22,4 % in der ersten Trennstufe und 20 % in der zweiten Trennstufe.

Tabelle 5-5: Kostenoptimierte Verschaltung der Membranmodule der ersten und zweiten Trennstufe bei 40 %, 60 % und 80 % Teillast sowie Vollast

Teillast	%	40	60	80	100
Anzahl Module 1. Trennstufe (1 m)	-	811	1940	3116	3626
Anzahl Module 1. Trennstufe (0,5 m)	-	3244	7760	12.464	14.504
Anzahl Module 2. Trennstufe (1 m)	-	20	50	80	99
Anzahl Module 2. Trennstufe (0,5 m)	-	80	200	320	396
Anteil aktiver Module 1. Trennstufe	%	22,4	53,5	85,9	100
Anteil aktiver Module 2. Trennstufe	%	20	50,5	80,8	100
Nettoverbrauch CCUS	MW	16,44	39,05	60,87	72,69
Nettowirkungsgrad, mit CCUS	%	38,1	38,6	38,9	39,9
Abtrenngrad	%	34,05	58,54	70,51	70
Spezifische variable Kosten	ct·kWh <sup>-1</sup>	2,06	1,88	1,79	1,75
Brennstoffkosten	ct·kWh <sup>-1</sup>	1,64	1,62	1,61	1,57
Zertifikatkosten	ct·kWh <sup>-1</sup>	0,42	0,26	0,18	0,18

## 5.8 Ergebnisse der kostenbasierten Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der kostenbasierten Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab zusammengefasst. Den Ausgangspunkt dieser Auslegung bildet der am Helmholtz-Zentrum Geesthacht entwickelte Entwurf eines neuartigen Taschenmoduls. Für diesen Modulentwurf wurde die Geometrie für einen Referenzfall unter Berücksichtigung der Randbedingungen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses festgelegt. Ausgehend von diesem Referenzfall wurden in weiteren Schritten einzelne Geometrie Größen systematisch verändert, um die hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses optimierte Modulgeometrie für beide Trennstufen zu finden. Die wesentlichen Ergebnisse sind die Folgenden:

- Für den Referenzfall ergeben sich Stromgestehungskosten von 7,3 ct·kWh<sup>-1</sup> und CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten von 68 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>. Der Wirkungsgradverlust durch den Abtrennprozess beträgt 6,6 %-Punkte. Es wird eine Membranfläche von 3,1 Mio. m<sup>2</sup> benötigt.
- Die Optimierungsmaßnahmen senken die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten um 15,8 % auf 57,2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> und den Wirkungsgradverlust auf 6 %-Punkte. Zudem verringert sich die benötigte Membranfläche auf 2,5 Mio. m<sup>2</sup>.
- Die optimale Eintrittsgeschwindigkeit liegt in der ersten Trennstufe bei 0,5 m·s<sup>-1</sup> und in der zweiten Trennstufe bei 1,1 m·s<sup>-1</sup>. Diese gelten in Kombination mit den optimierten Kanalhöhen von 1 mm für die Feedkanäle und von 2 mm für die Permeatkanäle.
- Eine Unterteilung der Membranmodule in Kompartimente ist für hohe Eintrittsgeschwindigkeiten nur sinnvoll, wenn die Feedkanäle höher sind als die Permeatkanäle.

- Trotz des Spülgaseffektes durch den permeierten Wasserdampf bei Betrieb im Gleichstrom ist der Betrieb im Gegenstrom vorteilhaft.
- Die Modulbreite und –höhe entscheiden über den Volumenstrom je Modul und damit über die Dimensionierung der Anschlussrohre. Die Modulhöhe und –breite wird in beiden Trennstufen auf 0,5 m festgelegt.
- Je höher die flächenbezogenen Permeationsraten durch die Membran sind, desto weniger Einfluss hat der Druckverlust auf die Triebkraft, sodass die optimale Eintrittsgeschwindigkeit größer wird.
- Für jeden Teillast-Betriebspunkt gibt es eine optimale Verschaltung aktiver Membranmodule in beiden Trennstufen, die die spezifischen variablen Kosten minimiert.

Diese Kernaussagen sind auf folgende Analysen zurückzuführen:

In Kapitel 5.1 wurden die Freiheitsgrade der Modulgeometrie bestimmt sowie Restriktionen für die Modulgestaltung festgelegt. Zu den frei wählbaren Geometriegrößen der Membranmodule zählen die Breite und Höhe des gesamten Moduls, die Höhen der Feed- und Permeatkanäle, die Eintrittsgeschwindigkeit des Feedstroms in den Membranstapel und die Anzahl hintereinander geschalteter Membranmodule beziehungsweise Kompartimente. Zudem ist die Lage der Permeatrohre und die damit verbundene Strömungsführung im Modul ein weiterer Freiheitsgrad. Die übrigen Geometriegrößen ergeben sich aus Randbedingungen, die durch den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess vorgegeben sind, und aus dem Aufbau der Membranmodule. Als Randbedingung des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses gelten zum einen der von der thermischen Leistung des Kraftwerks abhängige Rauchgasmassenstrom und dessen Zusammensetzung. Zum anderen wird als Trennergebnis vorgegeben, dass 70 % des im Kraftwerk bei Vollast produzierten CO<sub>2</sub> abgetrennt werden und der CO<sub>2</sub>-Produktstrom eine CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% hat. Hinsichtlich der Modulgeometrie wurden folgende Restriktionen eingeführt:

- Die maximale Modulbreite beträgt 2 m.
- Die minimale Kanalhöhe beträgt 1 mm.
- Die Modulhöhe entspricht der Modulbreite.
- Der minimale Durchmesser der Anschlussrohre wird so gewählt, dass die maximale Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren  $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  beträgt.

Ausgehend von diesen Randbedingungen wurde in Kapitel 5.2 die Geometrie der Membranmodule beider Trennstufen für einen Referenzfall festgelegt. In diesem Referenzfall beträgt die Modulbreite 2 m, die Höhe der Feedkanäle 2 mm und die Höhe der Permeatkanäle 1,5 mm. Der Feed strömt mit einer Geschwindigkeit von  $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  in den Membranstapel ein. Die Module mit dieser Geometrie wurden in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess integriert. Die Prozesssimulation ergibt eine benötigte Membranfläche von 3,1 Mio. m<sup>2</sup>. Dabei entfallen 3,05 Mio. m<sup>2</sup> auf die erste Trennstufe. Der Wirkungsgrad des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen sinkt durch die CO<sub>2</sub>-Abtrennung und die anschließende Kompression des CO<sub>2</sub>-Produktstroms auf 110 bar um 6,6 %-Punkte auf 39,3 %. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten liegen für den Referenzfall bei  $68 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Als wichtige Einflussgrößen auf die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten, die durch Optimierungsmaßnahmen bezüglich der Modulgeometrie beeinflusst werden können, wurden die Kompressorleistungen und die Membranfläche identifiziert. Daher wurden für die weiteren Analysen diese beiden Größen als Indikatoren für die Auswirkungen von Geometrievariationen auf die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten gewählt. Bei gegenläufigen Tendenzen, werden zur Beurteilung die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten berechnet.

Der Referenzfall dient als Ausgangs- und Referenzpunkt für die Optimierung der Geometrie. In einem ersten Schritt wurden in Kapitel 5.3 die Eintrittsgeschwindigkeiten in den Membranstapel und die Kanalhöhen der Feed- und Permeatkanäle simultan hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten optimiert. Zunächst wurden die maximal zulässigen Eintrittsgeschwindigkeiten für beide Trennstufen ermittelt, bei denen das geforderte Trennergebnis erreicht werden kann und am Modulende gerade noch eine positive Triebkraft für CO<sub>2</sub> herrscht. Die maximale Eintrittsgeschwindigkeit liegt in der ersten Trennstufe für die Modulgeometrie des Referenzfalls bei 1,5 m·s<sup>-1</sup> und in der zweiten Trennstufe bei ca. 3 m·s<sup>-1</sup>. Diese Grenzen berücksichtigend wurden die Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten in beiden Trennstufen losgelöst vom Abtrennprozess bezüglich der spezifischen Membranfläche optimiert. Die spezifische Membranfläche – also die Membranfläche bezogen auf den permeierten CO<sub>2</sub>-Strom – ist ein Indikator für die durchschnittliche Triebkraft im Membranmodul. Die Höhe des Permeatkanals sollte größer als die Höhe des Feedkanals sein, um die Druckverluste im Permeatkanal zu begrenzen. Optimal sind eine Kanalhöhe im Feed von 1 mm und eine Kanalhöhe im Permeat von 2 mm. Für eine Eintrittsgeschwindigkeit von 0,47 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe wird die spezifische Membranfläche auf 4950 m<sup>2</sup>·h·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> minimiert. Die vom Prozess losgelöst ermittelte, optimale Eintrittsgeschwindigkeit in die Membranstapel der zweiten Trennstufe liegt bei 0,85 m·s<sup>-1</sup>. Diese Eintrittsgeschwindigkeiten dienen als Startwerte für die Optimierung, wenn die Membranmodule im CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess integriert sind. Die Integration in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess ist notwendig, da sich bei Änderungen in der einen Trennstufe die Eigenschaften des Feedstroms der anderen Trennstufe verändern. Hier ergeben sich gegenläufige Tendenzen bei der simultanen Variation der Eintrittsgeschwindigkeiten in beiden Trennstufen für die insgesamt benötigte Membranfläche und dem elektrischen Nettoverbrauch. Daher wurden die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten als Bewertungskriterium angewandt. Die kostenoptimierte Eintrittsgeschwindigkeit ist 0,5 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe. In der zweiten Trennstufe ist die optimierte Eintrittsgeschwindigkeit mit 1,1 m·s<sup>-1</sup> höher, da durch die hohe Permeation aufgrund der hohen CO<sub>2</sub>-Partialdruckdifferenz am Modulanfang von ca. 1,5 bar der triebkraftmindernde Effekt der Konzentrationspolarisation verstärkt wird. Höhere Geschwindigkeiten sorgen für einen besseren Stoffaustausch in der Konzentrationsgrenzschicht und damit für eine niedrigere Konzentrationspolarisation. Durch die Optimierung der Eintrittsgeschwindigkeiten und der Kanalhöhen in beiden Trennstufen werden die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten um ca. 15,8 % auf 57,2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> gegenüber dem Referenzfall reduziert.

In Kapitel 5.4 wurde untersucht, unter welchen Bedingungen die Unterteilung des Membranmoduls in Kompartimente die benötigte Membranfläche bei einem konstanten Abtrenngrad reduziert. Die Unterteilung in Kompartimente entspricht einer Reihenschaltung von Membranmodulen. Dabei sind die in Reihe geschalteten Membranstapel für eine kompakte Bauweise jedoch in einem Membranmodul untergebracht. Der Nutzen dieser Unterteilung hängt davon ab, ob diese den CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Permeat verringert oder erhöht. Einerseits ist der Druckverlust in den kürzeren Permeatkanälen niedriger, andererseits erhöht sich der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeat, da der am Modulende permeierte Stickstoff nicht über die gesamte Modullänge als Spülgas fungieren kann. Wird die erste Trennstufe mit einer Geschwindigkeit von 0,9 m·s<sup>-1</sup> bis 1,2 m·s<sup>-1</sup> am Stapeleintritt durchströmt, ist die benötigte Membranfläche für zwei Kompartimente geringer als ohne Unterteilung des Membranmoduls, wenn die Feedkanäle 2 mm und die Permeatkanäle 1,5 mm hoch sind. Drei Kompartimente ergeben einen Vorteil hinsichtlich der Membranfläche für höhere Eintrittsgeschwindigkeiten als 1,2 m·s<sup>-1</sup>. Eine Unterteilung in zwei unterschiedlich lange Kompartimente bringt eine Verbesserung gegenüber der Einteilung in zwei gleich lange Kompartimente. Dabei sollte das erste Kompartiment kürzer als das zweite Kompartiment sein.

Für die in Kapitel 5.3 gefundenen optimalen Kanalhöhen – also einen 1 mm hohen Feedkanal und einen 2 mm hohen Permeatkanal – reduziert sich die Strömungsgeschwindigkeit in den Permeatkanälen so weit, dass die Verringerung des Druckverlustes in den Permeatkanälen durch die Unterteilung in Kompartimente keine wesentliche Verbesserung bringt. Vielmehr erhöht sich der  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil im Permeat, sodass bei diesen Kanalhöhen die Unterteilung in Kompartiment nicht sinnvoll ist. In der zweiten Trennstufe liegt für die optimierten Kanalhöhen die spezifische Membranfläche für alle Varianten der Unterteilung ungefähr bei  $164 \text{ m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ , wenn jeweils die optimale Eintrittsgeschwindigkeit gewählt wird. Die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten liegen zwischen  $0,85 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  und  $0,9 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Für höhere Geschwindigkeiten ergibt sich wie auch in der ersten Trennstufe ein Vorteil für die Unterteilung in mehrere Kompartimente.

In Kapitel 5.5 wurde der Betrieb des Membranmoduls im Gegenstrom mit dem Betrieb im Gleichstrom verglichen. Für die erste Trennstufe des Referenzfalls wird mit einem 5 m langen Membranmodul bei einer Eintrittsgeschwindigkeit von  $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  ein Abtrenngrad von 80 % erreicht, wenn das Modul im Gegenstrom betrieben wird. Bei Gleichstrombetrieb des gleichen Moduls werden hingegen nur 62 % des  $\text{CO}_2$  abgetrennt. Für ein Modul mit einer Länge von 0,4 m und eine gesteigerte Triebkraft ergibt sich dagegen ein um 0,1 %-Punkte besserer Abtrenngrad im Gleichstrombetrieb. Der am Modulanfang permeierende Wasserdampf dient im Gleichstrombetrieb über die gesamte Modullänge als Spülgas, während er im Gegenstrombetrieb direkt das Modul verlässt. Der Spülgaseffekt kann jedoch unter den Standard-Bedingungen der ersten Trennstufe auch dann nicht genutzt werden, wenn – aufbauend auf den Untersuchungen aus Kapitel 5.4 – das Membranmodul in zwei Kompartimente unterteilt wird und nur der erste, im Gleichstrom betrieben wird. Daher ist für die erste Trennstufe der Betrieb im Gegenstrom zu bevorzugen. In der zweiten Trennstufe ergibt sich für den aus Kapitel 5.3 beschriebenen optimierten Fall ein minimaler, nicht signifikanter Vorteil, wenn die ersten 0,25 m im Gleichstrom und die restlichen 0,48 m im Gegenstrom betrieben werden.

In Kapitel 5.6 wurden die Modulhöhe und –breite dimensioniert. Zunächst wurde gezeigt, dass die Modulhöhe nur bei Höhen unter 0,5 m einen Einfluss auf die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten hat. Dieser Einfluss ist darauf zurückzuführen, dass der Volumenstrom je Modul und die Membranfläche unterschiedlich schnell anwachsen. Bei Modulhöhen über 0,5 m ist dieser Effekt vernachlässigbar. Für die hinsichtlich der Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeiten optimierten Trennstufen ist ebenfalls keine Abhängigkeit der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten von der Modulhöhe nachweisbar. Die Packungsdichte ist für den hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall mit ca.  $506 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  bei einer Modulhöhe von 1,2 m am höchsten. Für Modulhöhen zwischen 0,5 m und 2 m weicht die Packungsdichte jedoch maximal um  $7 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  von diesem Optimum ab. Für höhere Module steigt der Volumenstrom je Modul. Damit vergrößern sich die Durchmesser der Anschlussrohre. Werden mehrere Permeatrohre parallel angeordnet oder die zulässige Strömungsgeschwindigkeit in den Permeat-rohren vergrößert, ist der Durchmesser des einzelnen Rohres kleiner, sodass ein höherer Anteil des Moduls im reinen Gegenstrom betrieben werden kann. Unter Annahme einer zulässigen Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren von  $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  wurde eine Modulhöhe von 0,5 m für beide Trennstufen ausgewählt. Zur Begrenzung des konstruktiven Aufwandes werden zwei Permeatrohre mit einem Durchmesser von je 80 mm in der ersten Trennstufe und zwei Permeatrohre mit einem Durchmesser von 70 mm in der zweiten Trennstufe ausgewählt. Bei einem sich ergebenden Durchmesser des Zulaufrohres von 60 mm in der ersten Trennstufe und 100 mm in der zweiten Trennstufe liegen die Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung bei  $47^\circ$  beziehungsweise  $44^\circ$ .

In Kapitel 5.7 wurde die Sensitivität der optimierten Geometriegrößen bezüglich Änderungen in den Permeationsraten bestimmt. Zum einen wurde die Triebkraft erhöht zum anderen wurden die Membraneigenschaften zugunsten der Permeation von CO<sub>2</sub> geändert. Mit steigender Permeationsrate erhöht sich die optimale Eintrittsgeschwindigkeit. Der zunehmende Einfluss der Konzentrationspolarisation wird mit einer Verbesserung des Stofftransports in der Konzentrationsgrenzschicht durch erhöhte Geschwindigkeiten ausgeglichen. Mit steigender Eintrittsgeschwindigkeit steigt auch der Volumenstrom in den Feed- und Permeatkanälen. Je höher die Permeationsraten und die Druckverhältnisse sind, desto höher sind die Permeatkanäle zu gestalten. Allerdings kann durch eine Vergrößerung des Permeatkanals von 2 mm auf 3 mm die spezifische Membranfläche maximal um 0,6 % reduziert werden. Gleichzeitig sinkt die Packungsdichte um 25 %, sodass die Kanalhöhe im Permeat auf 2 mm gehalten wird. Da mit steigendem Druckverhältnis der Einfluss des Druckverlustes auf die Triebkraft sinkt, bringt die Unterteilung in Kompartimente im Fall höherer Druckverhältnisse für keine Eintrittsgeschwindigkeit einen wesentlichen Vorteil. Mit steigender Abtrennung je Modul erhöht sich der Durchmesser der Permeatrohre. Da die Modullänge nicht wächst, sinkt der Anteil des Membranmoduls, der im reinen Gegenstrom betrieben werden kann.

Des Weiteren wurde die Auswirkung der Variation der Membraneigenschaften auf den Abtrennprozess untersucht. Wird durch die anhaltende Materialforschung die CO<sub>2</sub>-Permeanz von 3 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> auf 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> erhöht und werden die Permeanzen der übrigen Komponenten konstant gehalten, sinkt zum einen die benötigte Membranfläche. Zum anderen sorgt eine erhöhte Selektivität dafür, dass der CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeat steigt. Dadurch kann der Abtrenngrad der zweiten Trennstufe von 65,2 % auf 87,3 % erhöht werden ohne die geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% im CO<sub>2</sub>-Produktstrom zu unterschreiten. Dies entlastet die erste Trennstufe, sodass der Abtrenngrad dort von 78,2 % auf 72,8 % gesenkt werden kann und reduziert die Leistung des Kompressors zwischen der ersten und zweiten Trennstufe. Der Nettoverbrauch nimmt damit von 72,7 MW auf 61,3 MW ab. Werden auch die Permeanzen der übrigen Komponenten erhöht, sodass sich die gleichen Selektivitäten wie bei Polyactive<sup>®</sup> ergeben, müssen zur Einhaltung der CO<sub>2</sub>-Reinheit des CO<sub>2</sub>-Produktstroms die Abtrenngrade in beiden Trennstufen beibehalten werden. Damit ändert sich auch der Nettoverbrauch gegenüber dem mit Polyactive<sup>®</sup> ausgestatteten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess nicht. Allerdings ergibt sich eine weitere Abnahme der Membranfläche um 0,36 Mio. m<sup>2</sup>, da der am Modulende permeierende Stickstoff den Permeatstrom verdünnt und somit als Spülgas fungiert. Bezüglich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten ist jedoch eine gleichzeitige Erhöhung der CO<sub>2</sub>-Permeanz und der Selektivität gegenüber den anderen Komponenten vorteilhaft, da die Reduzierung des Nettoverbrauchs stärker ins Gewicht fällt als die Minderung der Membranfläche. Durch eine alleinige Steigerung der CO<sub>2</sub>-Permeanz auf 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> sinken die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten auf 41,8 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>.

Weiterhin wurde eine Verschaltung aktiver Membranmodule in beiden Trennstufen bestimmt, welche die spezifischen variablen Betriebskosten – bestehend aus Brennstoff- und Zertifikatkosten – für verschiedene Teillast-Betriebspunkte minimiert. Dabei wurden nur solche Kombinationen aus aktiven Membranmodulen betrachtet, die die CO<sub>2</sub>-Reinheit des Produktstroms von 95,5 mol-% auch bei Teillast einhalten. Gleichzeitig sollte maximal so viel CO<sub>2</sub> bei Teillast emittiert werden wie bei Vollast. Die spezifischen Betriebskosten sinken mit steigender Last, da dann sowohl der Nettowirkungsgrad des Kraftwerks mit CCUS ansteigt, als auch ein größerer Anteil des entstehenden CO<sub>2</sub> aus dem Rauchgas abgetrennt wird. Der Anteil aktiver Module an der Anzahl gebauter Module sinkt dabei schneller als die Last.

## 6 Diskussion der Ergebnisse

Im Folgenden werden die wesentlichen Erkenntnisse bezüglich der Konzeption und Auslegung eines neuartigen Membranmoduls für Flachmembranen dargestellt. Dabei werden Maßnahmen zur Optimierung der Strömungsführung innerhalb des Membranmoduls abgeleitet. Weiterhin werden Tendenzen bei der Auslegung des Membranmoduls für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgasen aufgezeigt und diskutiert. Die aggregierten Erkenntnisse münden in einer begründeten Auswahl einer Modulgeometrie und einer Modulverschaltung für den in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess. Die Ergebnisse zur Konzeption und Auslegung dieses neuartigen Membranmoduls für Flachmembranen werden hinsichtlich ihrer generellen Gültigkeit eingeordnet und diskutiert.

### 6.1 Maßnahmen zur optimierten Strömungsführung im Gegenstrommodul

Für die fluiddynamischen Untersuchungen des neuartigen Membranmoduls wurde ein Membranmodul konzipiert und es wurden CFD-Simulationen in ANSYS® FLUENT® durchgeführt. Der Schwerpunkt der Analysen lag in der Identifizierung von Strömungsinhomogenitäten innerhalb des Membranmoduls sowie in der Quantifizierung von deren Auswirkungen auf die Abtrennperformance. Das Membranmodul für die Strömungssimulationen in ANSYS® FLUENT® ist so aufgebaut, dass es als Prototyp-Modul gebaut und in eine Pilotanlage des Helmholtz-Zentrum Geesthacht integriert werden kann.

Dieses Prototyp-Modul besitzt eine Membranfläche von 5,66 m<sup>2</sup>, die sich auf 35 übereinander gestapelte Membrantaschen mit je 0,211 m aktiver Breite und 0,392 m aktiver Länge verteilt. Mit dieser Geometrie werden die Strömungssimulationen durchgeführt. Um die Abtrennperformance bewerten zu können, wurde eine benutzerdefinierte Funktion implementiert, durch die gemäß der Permeationsgleichung für die Gaspermeation eine Masse an der Membranoberfläche der Feedseite abgezogen und auf der Permeatseite der Membran hinzugefügt wird.

Bei den CFD-Simulationen soll trotz der vergleichsweise kleinen Membranfläche des Prototyp-Moduls ein hoher Abtrenngrad erzielt werden, um eine Verarmung der Feedströmung an CO<sub>2</sub> entlang des Feedkanals zu erzielen. Nur bei starker Abreicherung in einzelnen Kanälen wirkt sich die inhomogene Durchströmung der Feedkanäle auf die Abtrennperformance aus. Daher wurde für die Simulationen standardmäßig ein Retentatdruck von 4 bar und ein Permeatdruck von 0,1 bar angenommen. Die mittlere Strömungsgeschwindigkeit am Eintritt des Zulaufrohres wurde so eingestellt, dass bei homogener Verteilung des gesamten Feedstroms auf die Feedkanäle die Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle 0,4 m·s<sup>-1</sup> beträgt. Mit dieser Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit kann bei homogener Verteilung des gesamten Feedstroms ein CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad von 81,3 % erzielt werden. Statt eine konstante Geschwindigkeit am Anfang des Zulaufrohres vorzugeben, wird über eine benutzerdefinierte Funktion ein Geschwindigkeitsprofil einer voll ausgebildeten turbulenten Rohrströmung vorgegeben, um die Einlaufstrecke von ca. 1 m auf 0,1 m zu reduzieren. Damit ist gewährleistet, dass die Strömung voll ausgebildet ist, wenn sie das Zulaufrohr verlässt.

### **Poröse Körper als Ersatzmodell für die Spacer-gefüllten Kanäle**

Der Druckverlust in den Spacer-gefüllten Kanälen wird über ein Ersatzmodell bestimmt. Statt die Spacer geometrisch abzubilden, wird der Feedspacer durch einen porösen Körper ersetzt, der die gleiche Druckverlustcharakteristik und Porosität hat wie der Feedspacer. Dieses Modell wurde mithilfe eines Vergleiches mit Literaturangaben verifiziert. Der Druck fällt im Membranmodul bei niedrigen Volumenströmen hauptsächlich in den Spacer-gefüllten Kanälen des Membranstapels ab. Für die Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  liegt der Druckverlust bei 4,5 mbar im gesamten Modul. Durch den Aufprall der Strömung auf den Membranstapel liegt am Eintritt in den Membranstapel ein Staudruck vor, sodass der Gesamtdruck um 0,1 mbar erhöht wird. Der Druckverlust im Membranstapel beträgt 4,5 mbar und in der Querschnittsverjüngung 0,1 mbar. Da dieser Druckverlust im Vergleich zum Absolutdruck von 4 bar gering ist, hat er einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Abtrennperformance. Die Modellierung der Spacer als poröse Körper ist jedoch nicht nur wichtig, um den Druckverlust innerhalb des Membranmoduls zu quantifizieren. Die Funktion als Strömungshindernis bewirkt, dass der Feedstrom nicht ungehindert in die Feedkanäle strömt, und sorgt damit für eine bessere Abbildung der Realität.

### **Anströmung des Membranstapels**

Die Gestaltung des Zulaufbereichs des Membranmoduls beeinflusst das Strömungsverhalten im Zulauf und damit die Verteilung der Strömung auf die Feedkanäle. Je inhomogener die Aufteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle ist, desto kleiner ist der Abtrenngrad des Moduls. In den weniger durchströmten Feedkanälen wird zwar ein Großteil des dort eintretenden  $\text{CO}_2$  abgetrennt, aber der Anteil des dort permeierenden  $\text{CO}_2$  am gesamten in das Modul eintretende  $\text{CO}_2$  ist gering. Dagegen wird in den stärker durchströmten Feedkanälen nur ein geringer Teil des dort einströmenden  $\text{CO}_2$  abgetrennt, sodass der Abtrenngrad des Moduls insgesamt sinkt. Daher ist eine homogene Verteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle wichtig.

Die 200 mm lange Querschnittserweiterung verbindet das Zulaufrohr mit dem Membranstapel. Sie hat einen Öffnungswinkel in Richtung der Modulbreite von ca.  $50^\circ$  und in der Richtung Modulhöhe von  $15^\circ$ . Bei diesen Abmessungen löst die Strömung am Eintritt hauptsächlich in Richtung Modulbreite geometrisch induziert ab. Unter der Annahme eines freien Kanals hinter der Querschnittserweiterung ohne Gegendruck durch den Membranstapel strömt das Fluid entlang einer Wand. Liegt der Membranstapel hinter der Querschnittserweiterung ohne Spacer in den Feedkanälen, trifft ein Freistrahл auf diesen Stapel. Da der Gegendruck dieses Membranstapels nicht groß genug ist, strömt ein Großteil des Freistrahls ungehindert in die Feedkanäle. Da sich der Freistrahл auch in Richtung Modulhöhe nicht über die gesamte Höhe ausbreitet, ist die Aufteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle inhomogen. Der Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom schwankt ohne Spacer zwischen 2,4 % an den Rändern und 3 % in den mittleren Feedkanälen, wo der Freistrahл auf den Membranstapel trifft.

Der Feedspacer hält die Membrantaschen jedoch auf Abstand und ist zur Ausbildung eines Feedkanals in der Realität unverzichtbar. Wird er über den porösen Körper in der Simulation berücksichtigt, trifft der Freistrahл auf dieses Strömungshindernis und wird durch den Gegendruck partiell umgelenkt. Der Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom liegt im Fall mit Spacer-gefülltem Kanal auf der Feedseite bei 2,77 % in den mittleren Feedkanälen und bei 2,9 % in den äußersten Feedkanälen. Dies zeigt, dass der Gegen-

druck durch die Spacer-gefüllten Kanäle und die damit einhergehende Umlenkung der Strömung dazu führt, dass der Massenstrom homogener auf die Kanäle verteilt wird. Der erhöhte Anteil in den äußeren Feedkanälen ist darauf zurückzuführen, dass die umgelenkte Strömung dort erneut auf ein Hindernis – die obere und untere Gehäusewand – trifft und somit verstärkt in den äußeren Feedkanal gelenkt wird. Zwar wird ein Teil der Freistrahlsströmung seitlich abgelenkt und so auf die Modulbreite verteilt, aber die Geschwindigkeitsverteilung innerhalb eines Feedkanals ist am Anfang des Membranstapels noch nicht homogen. Die Geschwindigkeitsverteilung innerhalb der Feedkanäle wird erst hinter den Pemeatrohren gleichmäßig.

Es wurde untersucht, ob Leitbleche schon am Anfang des Membranstapels eine homogene Anströmung über der gesamten Breite eines Feedkanals herbeiführen können und ob dies eine Verbesserung der Abtrennperformance bewirkt. Verschiedene Geometrien der Leitbleche ergeben ein jeweils unterschiedliches Bild in der Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit. Die Leitbleche werden am Anfang der Querschnittserweiterung in den Strömungskanal integriert. Die homogenste Verteilung wird mit drei Leitblechen erreicht, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind. Durch die Leitbleche wird der divergente Kanal in mehrere divergente Kanäle unterteilt, sodass jeder Teilkanal einen reduzierten Öffnungswinkel besitzt. Werden nur zwei Leitbleche eingesetzt, löst die Strömung zwischen den Leitblechen wieder ab und es ergibt sich eine ähnliche Strömungsverteilung wie im Fall ohne Leitbleche. Der Einsatz von Leitblechen gewährleistet also, dass in jedem Fall jeder Feedkanal von Anfang an homogen angeströmt wird. Der Abtrenngrad erhöht sich durch den Einsatz von Leitblechen im Prototyp-Modul allerdings unabhängig von der Konfiguration der Leitbleche nur um ca. 0,4 %-Punkte. Alternativ kann der Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung durch Verlängerung dieses Modulbereichs soweit verkleinert werden, dass die Strömung nicht abfließt und dadurch eine homogene Verteilung erzielt wird. Dadurch sinkt jedoch die Packungsdichte des Membranmoduls.

Im Prototyp-Modul liegt der Öffnungswinkel in Richtung der Modulhöhe bei  $15^\circ$ , sodass sich die Strömung innerhalb der Querschnittserweiterung in diese Richtung ausbreitet. Zusätzlich wird die Aufteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle durch den Gegendruck der Spacer-gefüllten Feedkanäle homogener. Liegt hingegen eine andere Geometrie des Membranmoduls mit größeren Öffnungswinkeln in Richtung der Modulhöhe vor, löst die Strömung auch in diese Richtung ab und es entstehen Strömungsinhomogenitäten entlang der gestapelten Membrantaschen. Kann diese ungleichmäßige Verteilung nicht durch den Gegendruck der Spacer-gefüllten Kanäle vor Eintritt in die Feedkanäle gemindert werden, resultiert ein inhomogene Verteilung auf die Feedkanäle, die nachträglich nicht mehr ausgeglichen werden kann. In diesem Fall muss die Strömung in Richtung der Modulhöhe schon innerhalb der Querschnittserweiterung gleichmäßig verteilt werden. Somit kann für Öffnungswinkel in Richtung der Modulhöhe von mehr als  $15^\circ$  der Einsatz von Leitblechen ein wichtiges Instrument sein, um eine homogene Verteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle zu gewährleisten.

### **Bypass-Strömungen am Rand der Membrantaschen**

Ein Teil des Feedstroms, der seitlich abgelenkt wird, strömt am Rand des Membranmoduls durch einen Freiraum, der durch die Membranverjüngung aufgrund der thermischen Verschweißung entsteht. Diese Bypass-Strömung überströmt nicht die aktive Membranfläche und kann daher nicht an der Abtrennung teilnehmen. Auch durch die Leitbleche wird ein Teil des Feedstroms in Richtung Bypass gelenkt. Im realen Membranmodul können weitere Bypass-Strömungen beispielsweise durch Freiräume im Membranstapel oder zu kurze Mem-

brantaschen entstehen. Diese werden in der vorliegenden Arbeit nicht berücksichtigt. Da die Querschnittsfläche zwar klein aber die Strömungsgeschwindigkeit wegen des teilweise fehlenden Widerstandes des Spacers hoch ist, strömen bei dem Prototyp-Modul in Standardausführung 27 % des Feedstroms durch den Bypass. Dadurch sinken der  $\text{CO}_2$ -Massenanteil im Feed und damit die Triebkraft schneller, sodass die Abtrennperformance verschlechtert wird. Unter diesen Bedingungen liegt der Abtrenngrad bei 66 %. Wird eine ideal homogene Durchströmung aller Feedkanäle ohne Bypass-Strömung angenommen, ergibt sich bei sonst gleichen Bedingungen ein Abtrenngrad von 81,3 %. Dies ergibt eine Moduleffizienz des Prototyp-Moduls in Standardausführung von 81,2 %. Bei gleichem Feedstrom können somit unter der Annahme einer realen Strömung in den Feedkanälen 81,2 % des  $\text{CO}_2$ -Stroms abgetrennt werden, der unter der Annahme einer idealen Anströmung der Feedkanäle durch die Membran permeiert. Dies bestätigt die Simulation des Membranmoduls in Aspen Plus<sup>®</sup>, bei der ebenfalls 27 % des Feedstroms vor Eintritt in das Membranmodul abgezweigt werden und hinterher mit dem Retentat des Moduls vermischt werden.

Wird der Bypass abgedichtet oder durch andere Gestaltung der Membrantasche die Bypass-Strömung vermindert, steigt die Moduleffizienz auf mehr ca. 97 %. Die verringerte Abtrennperformance ist somit hauptsächlich auf die Bypass-Strömungen zurückzuführen. In Aspen Plus<sup>®</sup> werden die Bypass-Strömungen standardmäßig nicht berücksichtigt. Weiterhin wird von einer homogenen Verteilung des Feedstroms auf die Feedkanäle ausgegangen. Wird die Abdichtung des Bypass-Stroms durchgeführt, entspricht die Abtrennperformance des real angeströmten Membranmoduls der in Aspen Plus<sup>®</sup> simulierten Performance eines ideal angeströmten Membranmoduls nahezu. Daher eignet sich das in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup> programmierte Modell des Membranmoduls, um die Abtrennperformance des abgedichteten Moduls mithilfe von Simulationen in Aspen Plus<sup>®</sup> vorherzusagen.

### **Beitrag der CFD-Simulationen zur Modulauslegung**

Trotz des verwendeten Ersatzmodells und einer Vernetzung des gesamten Fluidraums mit Hexaeder-Zellen mithilfe von ANSYS<sup>®</sup> ICEM CFD<sup>™</sup> benötigt eine Simulation auf 8 Prozessoren ca. 4,5 Tage. Dies gilt für die Simulation mit den Abmessungen des Prototyp-Moduls. Geometrievariationen und Änderungen der Prozessparameter sind somit nicht in dem Umfang in akzeptabler Zeit möglich, der für die Auslegung des Membranmoduls notwendig ist. Weiterhin ist bei der Abbildung und Simulation eines Membranmoduls im Kraftwerksmaßstab die Rechenzeit viel höher, da die Modulgröße im Vergleich zum Prototyp-Maßstab um den Faktor 10 bis 1000 zunimmt. Daher wird die Modulauslegung in Aspen Plus<sup>®</sup> durchgeführt.

Die CFD-Simulationen können dazu genutzt werden, um die reale Anströmung der Membrantaschen zu visualisieren und so inhomogene Verteilungen des Feedstroms aufzuzeigen. Des Weiteren können Bypass-Strömungen identifiziert und quantifiziert werden. Die wichtigste konstruktive Maßnahme zur Erhöhung des Abtrenngrades, die sich daraus ableitet, ist die Abdichtung beziehungsweise Verminderung des Freiraums am Rand der Membrantaschen, durch die die Bypass-Strömung stattfindet. Hiermit kann der  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad von 66 % auf 78,8 % erhöht werden. Die Moduleffizienz steigt für diesen Fall um ca. 16 %-Punkte. Leitbleche homogenisieren zwar die Anströmung des Membranstapels, verbessern jedoch die Moduleffizienz nicht wesentlich. Eine Validierung der Strömungssimulationen steht noch aus, da bis zur Fertigstellung der vorliegenden Arbeit in ersten Versuchen noch keine belastbaren experimentellen Ergebnisse erzielt werden konnten.

## 6.2 Erkenntnisse aus der kostenbasierten Modulauslegung

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der kostenbasierten Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab diskutiert. Den Ausgangspunkt dieser Auslegung bildet ein unter Berücksichtigung der Randbedingungen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses definierter Referenzfall. Die Freiheitsgrade bei der Wahl der Modulgeometrie werden durch systematische Variationen einzelner Abmessungen hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses optimiert. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten sind bei gegenläufigen Tendenzen von Prozessgrößen bei der Optimierung ein allgemeines Bewertungskriterium.

### CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten im Referenzfall

Der Referenzfall ist im Wesentlichen dadurch gekennzeichnet, dass die Eintrittsgeschwindigkeit der Feedströmung in die Feedkanäle in beiden Trennstufen  $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  beträgt und die Membranmodule 2 m hoch und breit sind. Die Kanalhöhen im Feed und Permeat liegen bei 2 mm beziehungsweise 1,5 mm. Für den Referenzfall wird eine Membranfläche von insgesamt 3,1 Mio. m<sup>2</sup> benötigt, um den Prozessabtrenngrad von 70 % und eine CO<sub>2</sub>-Reinheit im Produktstrom von 95,5 mol-% zu erreichen. Der Wirkungsgradverlust, der durch die CO<sub>2</sub>-Abtrennung und Kompression auf 110 bar auftritt, beträgt 6,6 %-Punkte bei einem elektrischen Nettoverbrauch von 79,9 MW. Damit ergeben sich Stromgestehungskosten von  $7,3 \text{ ct} \cdot \text{kWh}^{-1}$  gegenüber  $4,75 \text{ ct} \cdot \text{kWh}^{-1}$  im Referenzfall ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Diese Kosten gelten für teilweise konservative Abschätzungen der ökonomischen Parameter. Beispielsweise wird ein kalkulatorischer Zinssatz von 10 % zugrunde gelegt, während in anderen Studien – wie in Abbildung 3-8 dargestellt – oft ein Zinssatz zwischen 5 % und 10 % angenommen wird. Die Tornado-Analyse zeigt, dass bereits bei einer Reduzierung des Zinssatzes von 10 % auf 8 % die SGK um ca. 6,6 % auf  $6,8 \text{ ct} \cdot \text{kWh}^{-1}$  sinken.

Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten liegen für den Referenzfall bei  $68 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Diese dienen als Referenzwert für die Auslegung der Membranmodule. Die Membranfläche und die Kompressorleistung beeinflussen die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten von den Prozesskenngrößen am meisten. Beide sind abhängig von der Ausnutzung der Triebkraft im Membranmodul. Die Membranfläche reduziert sich, wenn triebkraftmindernde Effekte wie Druckverlust und Konzentrationspolarisation verringert werden. Die elektrische Leistung der Kompressoren ist bei vorgegebenen Druckverhältnissen in beiden Trennstufen lediglich abhängig von dem zu verdichtenden Massenstrom. Das Rauchgasgebläse muss den Druckverlust auf der Feedseite der ersten Trennstufe kompensieren, sodass am Austritt aus dem Membranmodul der Retentatdruck dem Atmosphärendruck entspricht.

### Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeit

Eine wesentliche Erkenntnis der Modulauslegung ist die Existenz einer optimalen Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle. Zu niedrige Strömungsgeschwindigkeiten in den Kanälen verschlechtern den Stoffübergang an der Membranoberfläche und fördern die Neigung zur Konzentrationspolarisation. Zu hohe Strömungsgeschwindigkeiten erhöhen den Druckverlust. Gleichzeitig ist das Verhältnis von Feedkanalhöhe und Permeatkanalhöhe so zu wählen, dass bei einer gegebenen Strömungsgeschwindigkeit im Feedkanal die Triebkraftminderung im Permeat durch Druckverlust und Konzentrationspolarisation minimiert wird. Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe können also nur miteinander gekoppelt optimiert werden, um auf beiden Seiten der Membran für eine maximale Triebkraft zu sorgen.

Die Höhe des Feedkanals muss dabei kleiner als die Höhe des Permeatkanals sein. Im Permeatkanal ist zwar der Massenstrom geringer, aber aufgrund des niedrigeren Druckes ist die Dichte ebenfalls klein, sodass die Strömungsgeschwindigkeit durch einen höheren Permeatkanal gedrosselt werden kann. Für die Analysen wurden bei der Variation der Kanalhöhen Schrittweiten von 0,5 mm festgelegt. Durch die Fertigung eines maßgeschneiderten Spacers können die Kanalhöhen jedoch prinzipiell genauer eingestellt werden. Für jede Kombination aus Kanalhöhen existiert eine optimale Eintrittsgeschwindigkeit, die die spezifische Membranfläche – also die Membranfläche pro Tonne CO<sub>2</sub> im Permeat – minimiert. Mit dem Verhältnis der Kanalhöhen von 1:2 ergibt sich bei der optimalen Geschwindigkeit die niedrigste spezifische Membranfläche. Als optimale Kanalhöhen ergeben sich somit 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat für beide Trennstufen.

Die bezüglich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten optimierten Eintrittsgeschwindigkeiten liegen für diese Kanalhöhen in der ersten Trennstufe bei 0,5 m·s<sup>-1</sup> und in der zweiten Trennstufe bei 1,1 m·s<sup>-1</sup>. Die höhere Eintrittsgeschwindigkeit in der zweiten Trennstufe ist damit zu erklären, dass dort aufgrund der hohen Permeationsraten der Einfluss der Konzentrationspolarisation zunimmt und durch höhere Geschwindigkeiten der Stoffübergang an der Membranoberfläche verbessert wird. Die Eintrittsgeschwindigkeiten beider Trennstufen können nur gekoppelt miteinander optimiert werden, da sie die Zusammensetzung und Stoffmenge des Permeatstroms beeinflussen und das Permeat der einen Trennstufe den Feedstrom der anderen Trennstufe beeinflusst. Weiterhin ergeben sich gegenläufige Tendenzen der benötigten Membranfläche und des elektrischen Nettoverbrauchs des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses, sodass ein abschließender Vergleich von Prozessalternativen nur auf Basis der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten geschehen kann.

Insgesamt können die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten mit optimierten Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten von den oben erwähnten 68 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> auf 57,2 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> reduziert werden. Der Wirkungsgradverlust verringert sich um 0,6 %-Punkte auf 6 %-Punkte bei einem elektrischen Nettoverbrauch von 72,7 MW. Dies liegt daran, dass mit optimierten Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten die erste Trennstufe entlastet werden kann und damit der Kompressor zwischen der ersten und zweiten Trennstufe einen geringeren Massenstrom verdichten muss. Die benötigte Membranfläche ist mit 2,5 Mio. m<sup>2</sup> um 0,6 Mio. m<sup>2</sup> kleiner als im Referenzfall. Diese Ergebnisse werden in Abbildung 6-1 mit den Ergebnissen der Simulation des optimierten Falls ohne Berücksichtigung der triebkraftmindernden Druckverluste und der Konzentrationspolarisation verglichen. Für diesen idealen Fall liegen die benötigte Membranfläche bei 2,38 Mio. m<sup>2</sup> und der Wirkungsgradverlust bei 5,88 %-Punkten. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten betragen im idealen Fall bei sonst gleichen Prozessbedingungen 55 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup>. Somit liegt der optimierte Fall im Gegensatz zum Referenzfall nur 4 % über dem idealen Fall.

Wird durch die Forschung im Bereich der Membranmaterialien die CO<sub>2</sub>-Permeanz von 3 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> auf 6 m<sup>3</sup>(i.N.)·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> erhöht und damit auch die Selektivität gegenüber den übrigen Komponenten verdoppelt, können der Nettoverbrauch, die Membranfläche und damit auch die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten weiter gesenkt werden. Der Nettoverbrauch sinkt für diese CO<sub>2</sub>-Permeanz bei gleichbleibenden Permeanzen der anderen Komponenten auf 61,3 MW, da die CO<sub>2</sub>-Reinheit im Permeat beider Trennstufen durch die vergrößerte Selektivität erhöht wird. Dadurch ist der Permeatstrom der ersten Trennstufe, der vor dem Eintritt in die zweite Trennstufe komprimiert werden muss, kleiner. Der höhere CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeat verringert jedoch die Triebkraft, da der CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Permeat steigt. Gleichzeitig erhöht sich die optimale Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe von 0,5 m·s<sup>-1</sup> auf 0,75 m·s<sup>-1</sup>. In beiden Trennstufen werden aufgrund der geringe-

ren Gesamtvolumenströme und der höheren Volumenströme je Modul weniger Membranmodule benötigt, wenn sich die  $\text{CO}_2$ -Permeanz verdoppelt. Die Längen der Membranmodule bleiben mit 1 m in der ersten Trennstufe und 0,8 m in der zweiten Trennstufe im Vergleich zum optimierten Fall mit Polyactive® annähernd konstant. Dagegen reduziert sich die insgesamt benötigte Membranfläche auf 1,64 Mio.  $\text{m}^2$  aufgrund der höheren Permeationsrate und des geringen Volumenstroms je Trennstufe. Mit verdoppelter  $\text{CO}_2$ -Permeanz sinken die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten auf  $41,8 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ . Der Vergleich mit dem idealen Fall bei doppelter  $\text{CO}_2$ -Permeanz zeigt, dass das Optimierungspotenzial ohne Änderungen im  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess fast vollständig ausgeschöpft ist.

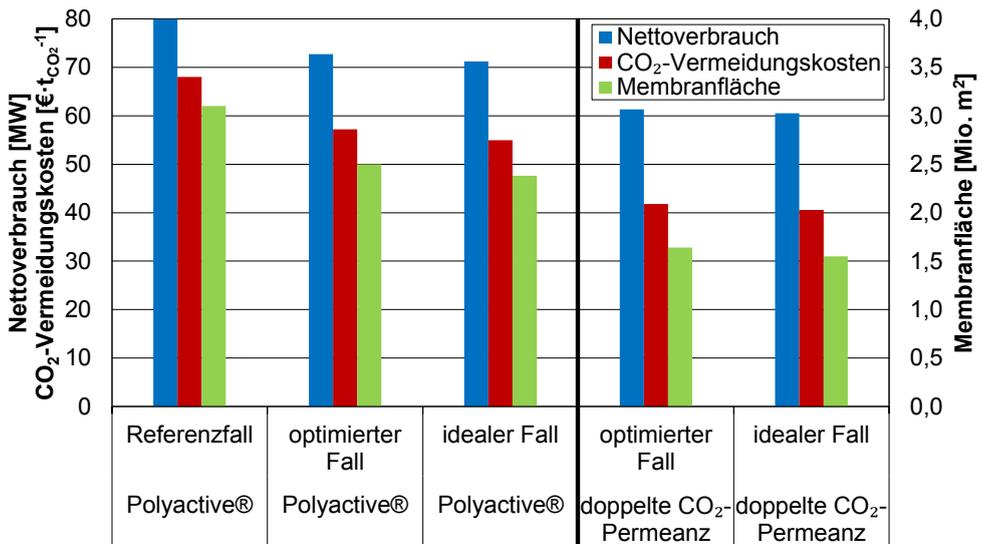


Abbildung 6-1: Vergleich des Nettoverbrauchs, der  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten und der Membranfläche im Referenzfall, im optimierten Fall und im idealen Fall mit  $\text{CO}_2$ -Permeanz von Polyactive® und Vergleich zwischen optimiertem und idealem Fall für eine doppelte  $\text{CO}_2$ -Permeanz wie bei Polyactive®

Nicht nur mit erhöhten  $\text{CO}_2$ -Permeanzen steigt die optimale Eintrittsgeschwindigkeit. Generell gilt, dass der Einfluss des Druckverlustes auf die Triebkraft geringer ist, je höher die flächenbezogenen Permeationsraten durch die Membran sind. Gleiches gilt auch für höhere Drücke, da der Anteil des Druckverlustes am Absolutdruck abnimmt. Dagegen nimmt der Einfluss der Konzentrationspolarisation mit höheren Permeationsraten zu, da die bevorzugt zurückgehaltene Komponente sich noch stärker an der Membranoberfläche konzentriert. Damit verschiebt sich die optimale Eintrittsgeschwindigkeit hin zu höheren Geschwindigkeiten, da durch sie der Stoffübergang an der Membranoberfläche verbessert wird. Auch bei von diesem neuen Optimum abweichenden Eintrittsgeschwindigkeiten ist die Abtrennperformance nicht wesentlich verschlechtert, da erst bei hohen Geschwindigkeiten und langen Modulen der Druckverlust die Triebkraft wesentlich mindert.

Der Druckverlust führt auch dazu, dass eine maximal zulässige Eintrittsgeschwindigkeit existiert. Aufgrund des triebkraftmindernden Effektes kann bei zu hohen Eintrittsgeschwindigkeiten der jeweils geforderte Abtrenngrad nicht mehr erreicht werden, da am Modulende keine positive Triebkraft mehr herrscht.

### **Kompartimente und Strömungsführung**

Die Unterteilung des Membranmoduls in Kompartimente entspricht einer Reihenschaltung von Membranmodulen. Es werden mehrere Membranstapel in einem Modulgehäuse hintereinander geschaltet, wodurch sich eine kompakte Bauweise ergibt, bei der der Retentatstrom des einen Kompartiments ohne Zwischenkompression den Feedstrom des anderen Kompartiments bildet. Somit wird nur der Permeatkanal in mehrere, kürzere Kanäle unterteilt und damit der Druckverlust auf der Permeatseite reduziert. Dadurch, dass das Permeat an mehreren Stellen abgezogen wird, kann der am Modulende verstärkt permeierende Stickstoff nicht über die gesamte Modullänge als Spülgas fungieren und den CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteil im Permeat senken. Daher hängt der Nutzen der Unterteilung in Kompartimente davon ab, welcher der beiden Effekte – Druckverlust oder Spülgas – den CO<sub>2</sub>-Partialdruck im Permeat stärker beeinflusst. Steigt für den Referenzfall die Eintrittsgeschwindigkeit über  $0,9 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , sind zwei Kompartimente vorteilhaft bezüglich der spezifischen Membranfläche. Für die optimierten Kanalhöhen liegt bei keiner Eintrittsgeschwindigkeit ein Nutzen durch die Unterteilung vor. Der Druckverlust auf der Permeatseite wird bereits durch die Optimierung der Kanalhöhen reduziert. Eine weitere Reduzierung des Druckverlustes durch die Unterteilung verringert den CO<sub>2</sub>-Partialdruck nur unwesentlich. Es überwiegt die Erhöhung des CO<sub>2</sub>-Partialdruckes aufgrund des verminderten Spülgaseffektes. Selbst bei minimalen Vorteilen durch die Unterteilung in Kompartimente ist zu berücksichtigen, dass die Anzahl der Permeatrohre und der zugehörigen Dichtungen verdoppelt wird, wenn statt einem Permeatabzug zwei Abzüge realisiert werden müssten. Dieser konstruktive Aufwand ist im Einzelfall dem Nutzen durch die Unterteilung gegenüberzustellen.

Die allgemeine Annahme, dass der Gegenstrombetrieb vorteilhaft gegenüber dem Gleichstrombetrieb ist, wurde für den vorliegenden Fall überprüft. Gibt es eine Gaskomponente im Feedstrom, die schneller permeiert als diejenige Komponente, die eigentlich im Permeatstrom angereichert werden soll, kann diese im Gleichstrombetrieb als Spülgas fungieren. Im vorliegenden Fall kann diese Funktion der Wasserdampf übernehmen. Im Gegenstrombetrieb verlässt der vorrangig am Modulanfang permeierende Wasserdampf das Membranmodul direkt wieder, da der Permeataustritt am Modulanfang liegt. Somit kann bei dieser Strömungsführung der Spülgaseffekt nicht genutzt werden. Allerdings wirkt dieser Effekt nur bei hohen Permeationsraten des Wasserdampfes, die durch einen erhöhten Anteil an Wasserdampf im Feed, einen erhöhten Druckverhältnis oder eine höhere H<sub>2</sub>O-Permeanz erreicht werden, positiv auf die Abtrennperformance. Je länger die Membranmodule werden, desto weniger spielt die Verdünnungswirkung eine Rolle und der Gleichstrombetrieb ist nachteilig. Eine Analyse unter Annahme einer hohen H<sub>2</sub>O-Permeationsrate ergibt, dass bei einem ca. 0,4 m langen Modul der Abtrenngrad im Gleichstrombetrieb um 0,1 %-Punkt höher liegt als im Gegenstrom. Diese hohen Permeationsraten können im zugrunde gelegten CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess für Wasserdampf jedoch nicht realisiert werden. Außerdem wird in der ersten Trennstufe der dort benötigte Abtrenngrad von 80 % bei einer viel höheren Modullänge von 5 m erreicht, wenn das Modul im Gegenstrom betrieben wird. Für die gleiche Modullänge liegt der Abtrenngrad im Gleichstrombetrieb bei 62 %. Trotz des Spülgaseffektes durch den permeierten Wasserdampf bei Betrieb im Gleichstrom ist unter den in der vorliegenden Arbeit angenommenen Bedingungen der Gegenstrombetrieb in der ersten Trennstufe vorteilhaft.

Eine Aufteilung des Membranmoduls in zwei Kompartimente, von denen das erste, kürzere Kompartiment im Gleichstrom und das zweite Kompartiment im Gegenstrom betrieben wird, erzielt in der zweiten Trennstufe einen geringen Nutzen aus dem Spülgaseffekt durch den Wasserdampf. Die Position der Permeatrohre bestimmt die Strömungsrichtung des Permeats. Da die Permeatrohre nicht direkt am Anfang des Membranstapels gesetzt werden, wird der Teil des Membranmoduls vor den Permeatrohren stets im Gleichstrom betrieben. Daher ist die Aufteilung in ein Gleichstrom- und ein Gegenstrom-Kompartiment durch die Position des Permeatrohres gegeben, ohne das Modul durch zwei in Reihe geschaltete Membranstapel aufteilen zu müssen. In den hinsichtlich der Kanalhöhen und der Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Membranmodulen der zweiten Trennstufe sollten die Permeatrohre so positioniert werden, dass 0,25 m des Membranmoduls im Gleichstrom und ca. 0,48 m im Gegenstrom betrieben werden.

### **Modulhöhe und Modulbreite**

Die Packungsdichte und die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten sind in einem weiten Bereich nahezu unabhängig von der Modulhöhe und -breite. Für Modulhöhen unter 0,5 m ergeben sich leichte Abweichungen in den CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten nach oben von 0,4 €·t<sub>CO<sub>2</sub></sub><sup>-1</sup> durch Randeffekte aufgrund eines geringeren Verhältnisses von Membranfläche je Meter Modullänge und Feedstrom je Modul. Ansonsten hat die Wahl der Modulhöhe vorrangig Einfluss auf die Modulgröße und auf den Volumenstrom je Modul. Die Modulhöhe wird in der vorliegenden Arbeit der Modulbreite gleichgesetzt, um einen geometrisch symmetrischen Zulaufbereich zu erhalten. Die Umsetzung dieser Annahme ist jedoch nicht zwingend erforderlich. Sowohl die Modulhöhe als auch die Modulbreite geben den durchströmten Querschnitt der Feedkanäle vor. Für eine bestimmte Eintrittsgeschwindigkeit ergibt sich damit der Volumenstrom je Modul, welcher auch die Dimensionierung der Anschlussrohre beeinflusst. In der vorliegenden Arbeit wurde eine maximal zulässige Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren von 10 m·s<sup>-1</sup> angenommen. Um den Abstand der Permeatrohre vom Modulende möglichst groß zu halten und damit zu einem hohen Anteil einen Betrieb im reinen Gegenstrom zu gewährleisten, sind zwei parallele Permeatrohre mit einem Durchmesser von je 80 mm in der ersten Trennstufe und 70 mm in der zweiten Trennstufe zu installieren. Die Auswahl von drei Permeatrohren erhöht diesen Anteil des reinen Gegenstrombetriebs aufgrund geringerer Durchmesser der einzelnen Rohre, allerdings steigt der konstruktive Aufwand. Industrielle Gasleitungen werden auch mit höheren Strömungsgeschwindigkeiten als 10 m·s<sup>-1</sup> durchströmt, sodass die Durchmesser weiter reduziert werden könnten. Die in der vorliegenden Arbeit getroffene Annahme lieferte somit eine konservative Abschätzung. Um zu gewährleisten, dass mindestens 75 % des Membranmoduls im reinen Gegenstrom betrieben werden und um eine Modularität des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses sicherzustellen, wird eine Modulhöhe und -breite von 0,5 m in beiden Trennstufen gewählt.

Durch die gewählte Modulhöhe und -breite von 0,5 m ergibt sich eine minimale Anzahl der Membranmodule je Trennstufe, um den gesamten Volumenstrom zu verarbeiten. In der ersten Trennstufe wird der Feedstrom bei der Eintrittsgeschwindigkeit von 0,5 m·s<sup>-1</sup> auf 14.504 Membranmodule aufgeteilt und in der zweiten Trennstufe müssen 396 Membranmodule parallel geschaltet werden. Allerdings sollte in der Planung eines membranbasierten Abtrennprozesses eine gewisse Redundanz berücksichtigt werden, damit einige Module für Wartungs- und Instandhaltungsarbeiten außer Betrieb genommen werden können. In jedem Membranmodul ist in der ersten Trennstufe eine aktive Membranfläche von 170 m<sup>2</sup> und in der zweiten Trennstufe von 123 m<sup>2</sup> verbaut.

Als charakteristische Größe zur Beschreibung der Querschnittserweiterung zwischen Zulaufrohr und Membranstapel gilt der Öffnungswinkel. Dieser beträgt für das Prototyp-Modul, welches den CFD-Simulationen zugrunde gelegt wird, ca. 50°. Bei diesem Öffnungswinkel löst die Strömung zwar ab, aber durch den Einsatz von Leitblechen kann dennoch eine homogene Verteilung innerhalb der Querschnittserweiterung erreicht werden. Damit diese homogene Verteilung auch in den Membranmodulen im Kraftwerksmaßstab gewährleistet ist, wird die Länge der Querschnittserweiterung auf 500 mm festgelegt, sodass der Öffnungswinkel in beiden Trennstufen für eine Modulhöhe von 0,5 m 50° nicht überschreitet.

Der Zielkonflikt zwischen CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad und CO<sub>2</sub>-Reinheit im Produktstrom macht sich auch bei Teillastbetrieb des Kraftwerks bemerkbar. Reduziert sich der Rauchgasstrom bei gleichbleibender Anzahl an installierten Membranmodulen, strömt der Feedstrom langsamer in die Membranmodule. Dadurch erhöht sich der Stufenschnitt des Moduls –also das Verhältnis von Permeat- zu Feedstrom –, aber gleichzeitig reduziert sich die CO<sub>2</sub>-Reinheit im Permeat, da sich bei stärkerer Abreicherung des CO<sub>2</sub> im Feed auch die Permeationsrate der übrigen Komponenten am Modulende erhöht. Um dennoch die geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% einzuhalten, müssen Membranmodule in beiden Trennstufen außer Betrieb genommen werden. Somit ergeben sich für jeden Teillast-Betriebspunkt mehrere mögliche Kombinationen von aktiven Membranmodulen in beiden Trennstufen von denen diejenige ausgewählt wird, welche die niedrigsten spezifischen variablen Betriebskosten hat.

### **Wesentliche Erkenntnisse**

Aus der Auslegung der Membranmodule lassen sich folgende wesentlichen Erkenntnisse ableiten:

- Es existiert eine optimale Eintrittsgeschwindigkeit in den Membranstapel, bei der die triebkraftmindernden Effekte – Druckverlust und Konzentrationspolarisation – minimiert werden.
- Die Kanalhöhen auf der Feed- und Permeatseite beeinflussen die Strömungsgeschwindigkeiten auf der Permeatseite und sind zusammen mit der Eintrittsgeschwindigkeit des Feedstroms in den Membranstapel zu optimieren.
- Die Einteilung des Membranmoduls in Kompartimente ergibt für hohe Strömungsgeschwindigkeiten in den Permeatkanälen einen Vorteil. Für den strömungsoptimierten Fall überwiegen jedoch die Nachteile durch den reduzierten Spülgasstrom.
- In Ausnahmefällen führt für niedrige CO<sub>2</sub>-Abtrenngrade des Membranmoduls der Betrieb im Gleichstrom zu einer Verringerung der benötigten Membranfläche.
- Mit steigender Modulgröße sollten die Permeatströme über mehrere parallel angeordnete Permeatrohre abgeleitet werden.
- Eine vergrößerte Triebkraft erhöht die optimale Eintrittsgeschwindigkeit.
- Im Teillastbetrieb des Kraftwerks muss ein Teil der parallelgeschalteten Membranmodule außer Betrieb genommen werden, um die geforderte CO<sub>2</sub>-Reinheit des Produktstroms zu erfüllen.

### 6.3 Begründete Auswahl einer Modulgeometrie im Kraftwerksmaßstab

Die in Kapitel 6.1 und Kapitel 6.2 dargelegten Erkenntnisse zur Auswahl der Modulgeometrie geben die Begründung für die in Tabelle 6-1 dargestellte Auswahl der optimierten Modulgeometrie in beiden Trennstufen. Die ausgewählte Modulgeometrie ist für den in der vorliegenden Arbeit angenommenen zweistufigen Abtrenprozess und für die Trenneigenschaften einer Membran mit Polyactive® als trennaktiver Schicht optimiert. Weiterhin werden ein Prozessabtrenngrad von 70 % und eine CO<sub>2</sub>-Reinheit von 95,5 mol-% angenommen. Abweichungen von diesen Randbedingungen ergeben andere optimale Abmessungen.

Tabelle 6-1: Optimierte Modulgeometrie in beiden Trennstufen

Trennstufe		1. Trennstufe	2. Trennstufe
Modullänge	m	1,03	0,76
Modulhöhe	m	0,5	0,5
Modulbreite	m	0,5	0,5
Kanalhöhe Feed	mm	1	1
Kanalhöhe Permeat	mm	2	2
Membrantaschen je Modul	-	167	167
Durchmesser des Zulaufrohres	m	0,06	0,10
Länge der Querschnittserweiterung	m	0,5	0,5
Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung	°	47	44
Anzahl der Permeatrohre	-	2	2
Durchmesser der Permeatrohre	m	0,08	0,07
Abstand der Permeatrohre zum Stapeleintritt	m	0,09	0,25
Anzahl der Kompartimente	-	1	1
Parallel geschaltete Membranmodule	-	14.503	395
Membranfläche	Mio. m <sup>2</sup>	2,450	0,049
Eintrittsgeschwindigkeit	m·s <sup>-1</sup>	0,5	1,1
CO <sub>2</sub> -Abtrenngrad	%	78,2	65,2

Mit diesen Geometrien der Membranmodule in beiden Trennstufen ergibt die Simulation des CO<sub>2</sub>-Abtrenprozesses die in Tabelle 6-2 aufgezeigte Verbesserung gegenüber dem Referenzfall.

Tabelle 6-2: Randbedingungen des Kraftwerksprozesses und des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses und Simulationsergebnisse des Abtrennprozesses mit optimierten Membranmodulen

<b>Randbedingungen Kraftwerk</b>				
Rauchgasvolumenstrom	m <sup>3</sup> (i.N.)·h <sup>-1</sup>	1,58·10 <sup>6</sup>		
CO <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil Rauchgas	mol-%	13,5		
N <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil Rauchgas	mol-%	70,1		
H <sub>2</sub> O-Stoffmengenanteil Rauchgas	mol-%	11,9 (gesättigt bei 50 °C)		
O <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil Rauchgas	mol-%	3,7		
Ar-Stoffmengenanteil Rauchgas	mol-%	0,8		
<b>Randbedingungen CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess</b>				
CO <sub>2</sub> -Abtrenngrad	%	70		
CO <sub>2</sub> -Reinheit des Produktstroms	mol-%	95,5		
Feed-/ Permeatdruck 1. Trennstufe	bar	1,05 / 0,15		
Feed-/ Permeatdruck 2. Trennstufe	bar	4 / 1		
<b>Simulation CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess</b>				
		Referenz	Optimiert	Rel. Abweichung [%]
CO <sub>2</sub> -Vermeidungsgrad	%	65,0	65,5	0,77
Membranfläche	Mio. m <sup>2</sup>	3,1	2,5	-19,4
Elektrischer Nettoverbrauch	MW	79,92	72,70	-9
Wirkungsgradverlust	%-Punkte	6,6	6,0	-9,1
Nettowirkungsgrad mit CCUS	%	39,3	39,9	1,5
Stromgestehungskosten	ct·kWh <sup>-1</sup>	7,31	6,80	-7
CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten	€·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup>	68,0	57,2	-15,8

## 7 Zusammenfassung

Anthropogene Treibhausgasemissionen zählen zu den Hauptursachen des weltweiten Klimawandels. In der Übergangszeit hin zu einem Kohlenstoffdioxid-neutralen Energiesystem gilt die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus großen Punktquellen als eine mögliche Brückentechnologie, um diese Emissionen zu begrenzen. Wesentlicher Vorteil des Post-Combustion Capture, bei dem die CO<sub>2</sub>-Abtrennung als End-of-Pipe-Technologie dem Prozess angehängt werden kann, ist die Nachrüstbarkeit bestehender Punktquellen wie beispielsweise Kohlekraftwerke. Die chemische Absorption mittels Monoethanolamin gilt dabei als Standardabtrennverfahren. Bei dieser Abtrenntechnik können jedoch schädliche Umweltwirkungen auftreten, wenn die Bildung von Aerosoltröpfchen zur Emission von Aminen und deren Degradationsprodukten führt. Die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung hat diesen Nachteil nicht. Neben der Forschung an neuen Membranmaterialien mit verbesserter Trennleistung und der Untersuchung des Abtrennprozesses, muss auch ein geeignetes Membranmodul, in dem die Membranen technisch handhabbar angeordnet und gleichzeitig optimal genutzt werden, gefunden werden.

In der vorliegenden Arbeit wurde basierend auf einem Entwurf des Helmholtz-Zentrums Geesthacht ein Membranmodul konzipiert und für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgasen ausgelegt. Das im 3-End betriebene Modul, bei dem das Permeat im Gegenstrom zum Feedstrom abgezogen wird, beinhaltet Flachmembranen aus Polyactive<sup>®</sup>. Ziel der Auslegung war es, die eingebaute Membranfläche möglichst vollständig und effektiv einzusetzen sowie eine hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten optimierte Integration in den Kraftwerksprozess mit dem am IEK-3 entwickelten zweistufigen CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess zu erreichen.

Dies wurde durch einen zweistufigen Auslegungsprozess realisiert. Zuerst wurden fluiddynamische Untersuchungen mittels CFD-Simulationen durchgeführt, um die Auswirkungen von Strömungsinhomogenitäten zu quantifizieren und geeignete Gegenmaßnahmen zu identifizieren sowie zu integrieren. Das so optimierte Modul wurde anschließend, abgebildet durch ein quasi-eindimensionales Ersatzmodell, in den CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess integriert. Die auslegungstechnischen Freiheitsgrade wurden dabei stets im Rahmen des Gesamtprozesses angepasst, um komponentenübergreifende Interdependenzen, wie beispielsweise die Abhängigkeiten der Trennstufen untereinander, zu erfassen.

Die fluiddynamischen Analysen wurden mittels ANSYS<sup>®</sup> FLUENT<sup>®</sup> an einem Prototyp-Modul mit einer Membranfläche von ca. 5,7 m<sup>2</sup> durchgeführt. Zur Darstellung des Moduls in den CFD-Simulationen wurde eine benutzerdefinierte Funktion hinzugefügt, welche die Permeation durch die Membran abbildet. Die zwischen den Membrantaschen positionierten Abstandshalter, genannt Spacer, werden durch strömungstechnisch gleichwertige poröse Körper ersetzt.

Mithilfe der CFD-Simulationen wurde gezeigt, dass Bypass-Strömungen am Rand der Membrantaschen zu einer erheblichen Verschlechterung der Abtrennperformance führen. So reduziert sich unter der Annahme eines Feeddruckes von 4 bar und eines Permeatdruckes von 0,1 bar sowie einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von 0,4 m·s<sup>-1</sup> der CO<sub>2</sub>-Abtrenngrad auf ca. 66,0 % im Vergleich zu 81,3 %, welcher bei idealer Anströmung erreicht würde. Diese deutlich reduzierte Moduleffizienz ist auf den hohen Anteil der Bypass-Strömung zurückzuführen. Ca. 27 % des Feedstroms strömt durch Freiräume, welche sich am Rand der Membrantaschen bilden, wo diese verschweißt sind. Dies führt neben Verarmungseffekten im hinteren Teil der überströmten Membran dazu, dass ein erheblicher Anteil des Feedstroms den Abtrennprozess umgeht. Durch eine Abdichtung dieser Freiräume kann die Moduleffizienz von

vorher 81,2 % auf dann 97,0 % erhöht werden, wodurch das Optimierungspotenzial hinsichtlich der Abtrennperformance nahezu vollständig ausgeschöpft wird.

Die Untersuchung zur Optimierung des Einströmverhaltens hat ergeben, dass der Einsatz von Leitblechen zwar zu einer gleichmäßigeren Verteilung des Feedstroms im Membranstapel führt, jedoch die Abtrennperformance dadurch nur unwesentlich gesteigert wird. Der Membranstapel ist im Prototyp-Modul in Standardausführung über eine 200 mm lange Querschnittserweiterung, deren Öffnungswinkel  $50^\circ$  beträgt, mit dem Zulaufrohr verbunden. Aufgrund der Geometrie dieser Querschnittserweiterung löst die Strömung am Anfang dieser Erweiterung ab, sodass ein Freistrahл auf den Membranstapel trifft. Hier wird die Strömung aufgrund des hohen Gegendrucks durch die Spacer-gefüllten Feedkanäle größtenteils umgelenkt, so dass sich der überwiegende Teil der Strömung über die Breite der Feedkanäle verteilt. Durch den Einsatz von Leitblechen kann die Entstehung des Freistrahls vermieden und eine gleichmäßigere Anströmung erreicht werden. Da sich jedoch im Membranstapel selbst beim Vorhandensein eines Freistrahls eine homogene Strömungsverteilung entlang der Breite bildet, führt dies nicht zu einer wesentlichen Verbesserung der Abtrennperformance.

Aufbauend auf den Voruntersuchungen wurde die Modulauslegung integriert im  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess durchgeführt. Zur Simulation des Prozesses wurde Aspen Plus<sup>®</sup> verwendet. Für das Membranmodul wurde ein quasi-eindimensionales Ersatzmodell in Aspen Custom Modeler<sup>®</sup> entwickelt, welches neben der Gaspermeation auch strömungsmechanische Effekte durch Druckverlust und Konzentrationspolarisation berechnet.

Für die Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab wurde der am IEK-3 entwickelte, zweistufige, membranbasierte  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess zugrunde gelegt. Dieser wird dem Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen als End-of-Pipe-Technologie angehängt. Als wichtigste Randbedingungen bei der Modulauslegung im Kraftwerksmaßstab sind der Prozessabtrenngrad von 70 % und die  $\text{CO}_2$ -Reinheit im Produktstrom von 95,5 mol-% einzuhalten. Die Freiheitsgrade bei der Wahl der Modulgeometrie beider Trennstufen sind die Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle, die Kanalhöhen im Feed sowie Permeat, die Breite und Länge der Membran sowie die Höhe des Moduls. Diese wurden systematisch variiert und so festgelegt, dass die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten des membranbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses minimiert werden. Des Weiteren wurde die Untergliederung des Permeatkanals in voneinander getrennte Kompartimente untersucht. Als Ausgangs- und Vergleichspunkt der Optimierung wurde ein Referenzfall definiert, dessen  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten bei ca.  $68,0 \text{ €} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  liegen. Für diesen Fall ergibt sich eine benötigte Membranfläche von 3,10 Mio.  $\text{m}^2$  sowie ein resultierender Wirkungsgradverlust von 6,6 %-Punkte.

Durch die Optimierung der Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle und der Kanalhöhen sowie Membranlängen kann die benötigte spezifische Membranfläche pro abgetrennte Tonne  $\text{CO}_2$  um 19,4 % gesenkt werden. Während die Eintrittsgeschwindigkeit direkten Einfluss auf die triebkraftmindernden Effekte – Druckverlust und Konzentrationspolarisation – im Feedkanal hat, wird durch die Wahl der Kanalhöhen im Feed und Permeat für einen gegebenen Abtrenngrad die Strömungsgeschwindigkeit im Permeat vorgegeben. Daher sind diese Größen stets gekoppelt zu betrachten. Der Druckverlust gewinnt mit steigender Strömungsgeschwindigkeit an Bedeutung, während für die Konzentrationspolarisation der umgekehrte Zusammenhang gilt. Unter Berücksichtigung des Zielkonflikts zwischen benötigter Membranfläche und elektrischem Nettoverbrauch des Abtrennprozesses und des Zusammenspiels beider Trennstufen ergeben sich optimale Eintrittsgeschwindigkeiten in beiden Trennstufen. Diese liegen bei  $0,5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  in der 1,03 m langen, atmosphärisch betriebenen ersten Trennstufe und

bei  $1,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der 0,76 m langen, bei 4 bar betriebenen zweiten Trennstufe. Die zugehörigen Kanalhöhen betragen 1 mm im Feed und 2 mm im Permeat. Durch diese Optimierung konnte die benötigte Membranfläche auf 2,50 Mio.  $\text{m}^2$  gesenkt werden. Diese liegt nur 5 % oberhalb des theoretischen Optimums von 2,38 Mio.  $\text{m}^2$ . In Kombination mit einem um 0,6 %-Punkte reduzierten Wirkungsgradverlust konnten so die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten im Vergleich zum Referenzfall um 15,8 % auf  $57,2 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  verringert werden. Diese können durch den Einsatz einer Membran mit doppelter  $\text{CO}_2$ -Permeanz von  $6 \text{ m}^3(\text{i.N.})\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{bar}^{-1}$  um weitere 27 % auf  $41,8 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  gesenkt werden.

Die Unterteilung der Permeatseite in Kompartimente, die einer Reihenschaltung innerhalb eines Moduls entspricht, erweist sich bei optimierten Strömungsbedingungen als nachteilig. Zwar können dadurch die triebkraftmindernden Druckverluste reduziert werden, jedoch überwiegt der Effekt, dass das zwischenzeitlich abgezogene Permeat nicht mehr als Spülgas für den Rest der Membran fungieren kann. Lediglich in der zweiten Trennstufe kann unter optimierten Bedingungen eine kleine Reduktion der Membranfläche um  $100 \text{ m}^2$  auf  $47.500 \text{ m}^2$  erreicht werden. Dazu wird das erste Kompartiment 0,25 m lang ausgeführt und im Gleichstrom betrieben, während das zweite Kompartiment mit einer Länge von ca. 0,48 m im Gegenstrom betrieben wird. Durch den Gleichstrombetrieb im ersten Kompartiment wird der am Modulanfang schnell permeierende Wasserdampf als Spülgas genutzt.

Während die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten und die Packungsdichte weitgehend unabhängig von der Modulgröße sind, steigt mit höheren und breiteren Modulen der Volumenstrom je Modul an und damit sinkt die Anzahl der parallel geschalteten Module. Für größere Module müssen die Permeatrohre entsprechend dimensioniert werden, um den Permeatstrom abzutransportieren. Damit diese zum Erhalt der optimierten Strömungsführung positioniert werden können, wurden die Modulhöhe und -breite für beide Trennstufen auf 0,5 m festgelegt.

Zusammenfassend ergeben sich folgende wesentlichen Ergebnisse der vorliegenden Arbeit:

- Strömungen, die nicht über die trennaktive Membranfläche strömen, reduzieren signifikant die Abtrennperformance des Membranmoduls. Diese Bypass-Strömungen sind durch Abdichtungen oder Verringerung von Freiräumen, die nicht mit Spacern ausgefüllt sind, zu begrenzen. Durch die Abdichtung des Bypasses am Rand der Membrantaschen konnte die Moduleffizienz von 81,2 % auf ca. 97,0 % gesteigert werden. Die Homogenisierung der Anströmung des Membranstapels durch Leitbleche bewirkt im Prototyp-Modul keinen wesentlichen Vorteil hinsichtlich des  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrades.
- Die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten des membranbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses können durch die Wahl eines optimierten Verhältnisses der Kanalhöhen im Feed und Permeat und durch die Wahl einer optimalen Eintrittsgeschwindigkeit von  $68,0 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  auf  $57,2 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  reduziert werden. Die Feed- und Permeatkanäle sollten 1 mm beziehungsweise 2 mm hoch sein. Die optimierten Eintrittsgeschwindigkeiten liegen für diese Kanalhöhen bei  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der ersten Trennstufe und bei  $1,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der zweiten Trennstufe. Die weiteren Geometriegrößen des Membranmoduls beeinflussen dann die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten nicht oder nur geringfügig.
- Eine andere Strömungsführung im Permeat, beispielsweise durch die Unterteilung in Kompartimente, kann genutzt werden, um modulinterne Druckverluste zu reduzieren. Für den strömungsoptimierten Fall ist dieser Vorteil aber so gering, dass die Nachteile durch den reduzierten Spülgasstrom und den konstruktiven Aufwand überwiegen.
- Wird nur die  $\text{CO}_2$ -Permeanz der Membran verdoppelt sinken im optimierten Fall die  $\text{CO}_2$ -Vermeidungskosten weiter um 26,9 % auf dann  $41,82 \text{ €}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$ .

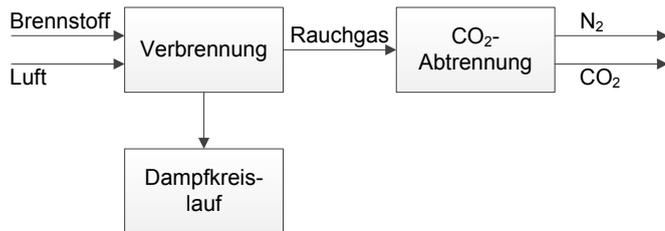


## 8 Anhang

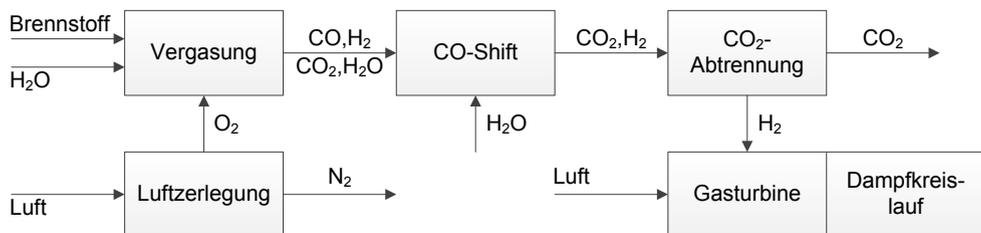
### 8.1 Abtrennrouten

Je nach Abtrennrouten ergeben sich andere prozesstechnische Einbindungen des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses in den Kraftwerksprozess. Die vereinfachten Prozessflussbilder der drei Hauptabtrennrouten sind in Abbildung 8-1 dargestellt.

#### Post-Combustion



#### Pre-Combustion



#### Oxyfuel-Prozess

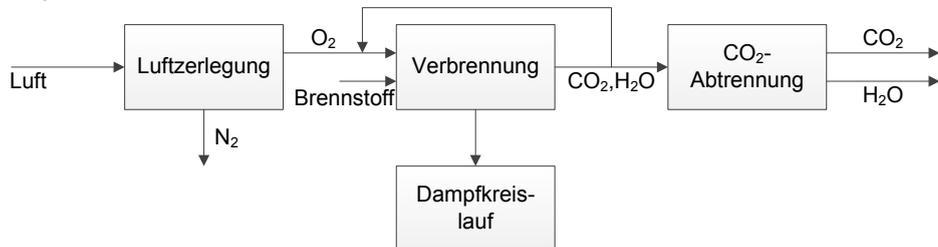


Abbildung 8-1: Schematische Prozessflussbilder der drei Hauptabtrennrouten in Anlehnung an [127, S. 67-73]

Im sogenannten Post-Combustion Capture erfolgt die Abtrennung des CO<sub>2</sub> als End-of-Pipe-Lösung nach der konventionellen Rauchgasreinigung. Der Brennstoff wird unter Zugabe von Luft verbrannt, sodass das Rauchgas größtenteils aus Stickstoff und CO<sub>2</sub> besteht. Die zweite Alternative – das sogenannte Pre-Combustion Capture setzt eine Vergasung des Brennstoffs und eine anschließende Umsetzung des entstandenen Synthesegases zu einem Gemisch aus hauptsächlich CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub> voraus. Somit kann das Kohlenstoffdioxid schon vor der Verbrennung abgetrennt werden und der Wasserstoff wird als Brennstoff einer Gasturbine

zugeführt. Beim sogenannten Oxyfuel-Prozess wird der Brennkammer beinahe reiner Sauerstoff zugeführt. Dabei ergibt sich ein Rauchgas, welches nahezu ausschließlich Wasserdampf und  $\text{CO}_2$  enthält, sodass die anschließende Anreicherung des  $\text{CO}_2$  im Wesentlichen aus der Kondensation des Wasserdampfs besteht. Jede dieser Routen hat seine Vor- und Nachteile, die im Folgenden kurz erläutert werden.

### **Post-Combustion Capture**

Die  $\text{CO}_2$ -Abtrennung wird beim Post-Combustion Capture als End-of-Pipe-Technik dem bestehenden Kraftwerksprozess angefügt, sodass kein Kraftwerksneubau nötig ist. Es ist daher die Trennrute der Wahl für die Nachrüstung eines bereits bestehenden Kraftwerks. Je nach Abtrenntechnik sind allerdings kleinere Eingriffe in das bestehende Kraftwerk notwendig, um zum Beispiel eine bessere Wärmeintegration zu erzielen. Das Rauchgas besitzt bei Kohlekraftwerken einen  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil von ca. 12 bis 14 % und bei Gaskraftwerken von 3 bis 4 % [20]. Das Rauchgas hat einen Druck von 1 bar, sodass das  $\text{CO}_2$  mit einem Partialdruck von 30 bis 140 mbar stark verdünnt ist. Außerdem sind die zu behandelnden Rauchgasvolumenströme mit ungefähr  $1,6 \cdot 10^6 \text{ m}^3(\text{i.N.}) \text{ h}^{-1}$  für ein Kraftwerk mit einer Nettoleistung von 555 MW [30] sehr hoch, sodass die Anlagen zur  $\text{CO}_2$ -Abtrennung entsprechend groß dimensioniert sein müssen. Die chemische Absorption mittels Aminien gilt als die am weitesten entwickelte Technologie zur  $\text{CO}_2$ -Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas. Standardmäßig wird Monoethanolamin als Absorptionsmittel eingesetzt. Die Wirkungsgradverluste bei der aminbasierten Absorption liegen zwischen 7 und 13 %-Punkten. [10]. In Kanada betreibt SaskPower seit Oktober 2014 eine aminbasierte  $\text{CO}_2$ -Wäsche im Kraftwerksmaßstab, bei der jährlich ca. 1 Mio.  $\text{t}_{\text{CO}_2}$  abgetrennt werden [128]. Eine alternative Abtrenntechnik im Post-Combustion Capture ist in der vorliegenden Arbeit untersuchte membran-basierte Gastrennung mittels Polymermembranen. Die Membrantechnik im Post-Combustion Capture verspricht Wirkungsgradverluste unter 6 %-Punkte. [15], die unter den Wirkungsgradverlusten der aminbasierten Absorption liegen.

### **Pre-Combustion Capture**

Pre-Combustion Capture bietet sich bei der Verstromung von Kohle im Gas- und Dampfturbinen-Kombikraftwerk mit integrierter Kohlevergasung (Integrated Gasification Combined Cycle, IGCC) an. Das Synthesegas aus der Kohlevergasung wird im CO-Shift bei einem Druck von über 20 bar zu einem Gasgemisch umgewandelt, welches mit  $\text{CO}_2$  angereichert ist. Dadurch liegt für die anschließende  $\text{CO}_2$ -Abtrennung je nach CO-Shift ein  $\text{CO}_2$ -Partialdruck von ungefähr 12 bis 20 bar vor [10], was für die Abtrenntechniken des Pre-Combustion Capture energetisch vorteilhaft ist. Zudem verringert sich die Kompressionsenergie für den  $\text{CO}_2$ -Transport, da die Trennung bereits bei erhöhtem Druck abläuft. Durch die Vergasung mit angereichertem Sauerstoff sind die Gasvolumenströme im CO-Shift und der  $\text{CO}_2$ -Abtrennung geringer als beim Post-Combustion Capture. Die konventionelle  $\text{CO}_2$ -Abtrennung erfolgt mittels energieintensivem Wassergas-Shift-Reaktor und anschließender physikalischer Absorption mit einem Wirkungsgradverlust von 7 bis 8 %-Punkten [129]. Als Absorptionsmittel werden häufig Methanol im sogenannten Rectisol-Verfahren oder eine Mischung der Dimethylether des Polyethylenglycol in der sogenannten Selexol-Wäsche eingesetzt [130]. Durch Integration eines Wassergas-Shift-Membranreaktors, Prozessoptimierung und Einsatz einer Wasserdampf-permeablen Membran zur Regulierung des Dampfhaushalts kann der Wirkungsgradverlust auf bis zu 3,6 %-Punkte reduziert werden [74]. Die Komponenten dieses Konzepts sind jedoch noch nicht ausreichend erforscht und können in näherer Zukunft nicht eingesetzt werden. Aktuelle Forschungsschwerpunkte sind [129] zu entnehmen. Eine

Nachrüstung bestehender Kraftwerke mit integrierter Kohlevergasung ist prinzipiell möglich, jedoch aufwendig, da die Wassergas-Shift-Reaktion integriert werden muss und die Gasturbine eine höhere  $H_2$ -Konzentration aushalten muss [10]. Ein Großteil des heutigen kohlebefeuerter Kraftwerksparks nutzt jedoch die Kohleverbrennung ohne integrierte Vergasung. Im Jahr 2010 waren nur sieben kommerzielle IGCC-Kraftwerke in Betrieb [131]. Als Hauptnachteil werden die hohen Investitions- und Betriebskosten des Kraftwerks angeführt [132].

### Oxyfuel-Prozess

Beim Oxyfuel-Prozess wird der Stickstoff vor der Verbrennung abgetrennt und der Brennstoff in einer Atmosphäre aus Sauerstoff, rezirkuliertem  $CO_2$  und Wasserdampf verbrannt. Eine Verbrennung mit nahezu reinem Sauerstoff führt zu Verbrennungstemperaturen von bis zu  $3500\text{ }^\circ\text{C}$ , sodass zur Kühlung des Kessels ein Rauchgasteilstrom zurückgeführt wird [133]. Somit sind auch für diese Abtrennrouten Änderungen im Kraftwerksprozess notwendig und eine Nachrüstung bedeutet massive Eingriffe in das Kraftwerk. Durch die Prozessführung ist zum einen der Rauchgasvolumenstrom des Oxyfuel-Prozesses gering, zum anderen besteht das Rauchgas zu 75 bis 80 % aus  $CO_2$  und der Rest ist größtenteils Wasserdampf [133]. Dadurch reduziert sich der Energieaufwand der nachgelagerten  $CO_2$ -Abtrennung, da der Wasserdampf über Kondensation abgetrennt werden kann. Allerdings ist die Luftzerlegung zur Bereitstellung des angereicherten Sauerstoffs energieintensiv und wird heutzutage standardmäßig über eine kryogene Luftzerlegung mit einem Wirkungsgradverlust von 5,5 bis 7,5 %-Punkten bewerkstelligt [60]. Insgesamt liegen die Wirkungsgradverluste bei ca. 7 bis 12 %-Punkten [10]. Weitere Nachteile dieser Methode sind neben dem hohen Energieaufwand von 160 bis  $220\text{ kWh}\cdot t_{O_2}^{-1}$  die niedrigen An- und Abfahrtsraten von 3 % der Nennleistung pro Minute gegenüber 4 bis 5 % der Nennleistung pro Minute im übrigen Kraftwerksprozess [134, S. 18]. Alternativ ist die membranbasierte Luftzerlegung mit Keramikmembranen, die Sauerstoff-Ionen leiten und zu nahezu 100 % selektiv sind, Forschungsgegenstand [135]. Mit ihnen können die Wirkungsgradverluste auf 3,4 bis 9,9 %-Punkte reduziert werden [136].

### Fazit

Das Pre-Combustion Capture bietet die Möglichkeit, durch Prozessoptimierung den Wirkungsgradverlust im Gegensatz zu den anderen Abtrennrouten niedrig zu halten. Allerdings sind die Investitionskosten dieser Route hoch und die einzelnen Komponenten des Kraftwerks mit integrierter Vergasung und  $CO_2$ -Abtrennung müssen noch erforscht werden. Beim Oxyfuel-Prozess ist die  $CO_2$ -Abtrennung aus dem Rauchgas einfach, da das Rauchgas fast nur aus  $CO_2$  und Wasserdampf besteht. Doch auch hier sind größere Eingriffe in den konventionellen Kraftwerksprozess notwendig. Somit bietet nur das Post-Combustion Capture die Möglichkeit, die  $CO_2$ -Abtrenntechnik als End-of-Pipe-Lösung an ein bestehendes Kraftwerk anzufügen. Dadurch reduziert sich zum einen der Forschungsbedarf auf die eigentliche  $CO_2$ -Abtrennung und die übrigen Kraftwerkskomponenten müssen nicht neu entwickelt werden. Zum anderen können mit dieser Technik bereits bestehende Kraftwerke nachträglich ausgerüstet werden. Weltweit sind derzeit Kohlekraftwerke mit einer installierten Leistung von ca. 1627 GW – davon mehr als ein Fünftel jünger als fünf Jahre alt<sup>12</sup> – in Betrieb [137]. Allein in China und Indien sind Neuinstallationen mit einer Leistung von mehr als 1000 GW geplant [138]. Dies unterstreicht die Bedeutung der Nachrüstbarkeit an konventionellen Kraftwerken.

<sup>12</sup> Aktuell im Betrieb befindliche Kohlekraftwerke haben eine Nutzungsdauer von bis zu 50 Jahren [123].

## 8.2 Post-Combustion Capture Prozesse

In diesem Abschnitt werden zwei Hauptabtrenntechniken im Post-Combustion Capture beschrieben und miteinander verglichen. Der Referenzprozess ist die chemische Absorption, die häufig mit aminbasierten Absorptionsmitteln durchgeführt wird. Sie ist die am weitesten entwickelte Abtrenntechnik im Post-Combustion Capture [10, S. 12] und wird daher als Referenz nachfolgend beschrieben. Der in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegte membranbasierte Abtrennprozess, der am IEK-3 entwickelt wurde, wird in Kapitel 2.5.3 vorgestellt. Das Betriebsverhalten dieser beiden Abtrenntechniken wird im Folgenden verglichen.

### Chemische Absorption als Referenzprozess im Post-Combustion Capture

Die chemische Absorption mittels 30 %-iger Monoethanolamin gilt als Standardprozess im Post-Combustion Capture von Kohlekraftwerken. Die aminbasierte Trenntechnik wird bereits bei der Erdgasaufbereitung zur Abtrennung von  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{S}$  aus Erdgas im sogenannten Girbotol-Verfahren großtechnisch angewandt [139, S. 527]. Zur Abtrennung von  $\text{CO}_2$  aus Kraftwerksrauchgas ist der Prozess weitgehend im Pilotanlagenmaßstab erforscht. Aktuell wichtigster Forschungsschwerpunkt ist die Reduktion des Energieaufwands durch die Wahl eines geeigneten, die Regenerationsenergie minimierenden Absorptionsmittels und durch Variation der Prozessführung [140]. Durch den Einsatz neuer Waschmittel und effizienterer Packungen in der Absorber- und Desorberkolonne kann der spezifische Energiebedarf der Regeneration auf  $2,8 \text{ GJ} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}$  reduziert werden [141]. Weiterhin werden die Prozessführung zur Verringerung der unerwünschten Emission von Aminen und deren Degradationsprodukte und der Einsatz kostengünstiger und zugleich korrosionsbeständiger Materialien wie zum Beispiel glasfaserverstärkte Kunststoffe zur Senkung der Investitionssumme untersucht [10; 142, S. 311]. Üblicherweise werden 90 % des  $\text{CO}_2$  abgetrennt wobei eine  $\text{CO}_2$ -Reinheit des  $\text{CO}_2$ -Produktstroms von über 99 mol-% erreicht werden kann [142; 143].

Der prinzipielle Aufbau des aminbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses ist in den meisten Forschungsprojekten ähnlich. Stellvertretend ist in Abbildung 8-2 der  $\text{CO}_2$ -Absorptionsprozess, der im Innovationszentrum Kohle in Niederaussem von der RWE Power AG betrieben wird, dargestellt. Das Rauchgas wird in einer dem eigentlichen Abtrennprozess vorgelagerten Feinwäsche gekühlt und mittels Natronlauge ( $\text{NaOH}$ ) werden Spuren von Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ) aus dem Rauchgas entfernt.  $\text{SO}_2$  und Sauerstoff sind für die Amindegradation zu temperaturbeständigen Salzen verantwortlich [144]. Das gekühlte und von  $\text{SO}_2$  befreite Rauchgas wird über ein Rauchgasgebläse in den Absorber geleitet. Hier strömt es im Gegenstrom zu dem unbeladenen Waschmittel in der Absorberkolonne nach oben. Das unbeladene Waschmittel rieselt durch die Packungen des Absorbers nach unten und reagiert unter Wärmeentwicklung mit dem  $\text{CO}_2$  des Rauchgases. In dem in Abbildung 8-2 dargestellten Prozess ist aufgrund dieser Wärmeentwicklung eine Zwischenkühlung des Waschmittels integriert. Das beladene Waschmittel wird in einem Waschmittel-Waschmittel-Wärmeübertrager vorgewärmt und gelangt in den Desorber. Hier wird das Waschmittel im Desorbersumpf in einem Verdampfer erwärmt, sodass es das gebundene  $\text{CO}_2$  wieder abgibt. Die notwendige Regenerationswärme wird über Prozessdampf aus Übergang zwischen Mitteldruck- und Niederdruckturbine bereitgestellt [64]. Die im großtechnischen Einsatz der aminbasierten Absorption notwendige Anzapfung des Prozessdampfes wird in dem in Abbildung 8-2 dargestellten Prozess umgangen, indem die Wärme durch einen elektrischen Erhitzer zur Verfügung gestellt wird. Das regenerierte Waschmittel sammelt sich im Desorbersumpf und wird zurück zum Absorber im Kreislauf geführt. Dabei passiert es den Waschmittel-Waschmittel-Wärmeübertrager und wärmt somit das beladene Waschmittel auf. Der  $\text{CO}_2$ -Produktstrom

wird im Kondensator gekühlt, sodass Wasser- und Waschmitteltropfen abgeschieden werden. Anschließend wird es auf den gewünschten Druck von 110 bar komprimiert. Oberhalb des Absorberkopfes kann das CO<sub>2</sub>-arme Rauchgas in nachgeschalteten Waschprozessen von Emissionen der Amine und leichtsiedenden Degradationsprodukte befreit werden. In dem in Abbildung 8-2 dargestellten Prozess sind für diesen Reinigungsschritt die Wasserwäsche und die Zusatzwäsche vorgesehen. Letzterer Wäsche kann ein Additiv zugegeben werden, um die Rückhaltung der genannten Komponenten im Prozess zu unterstützen.

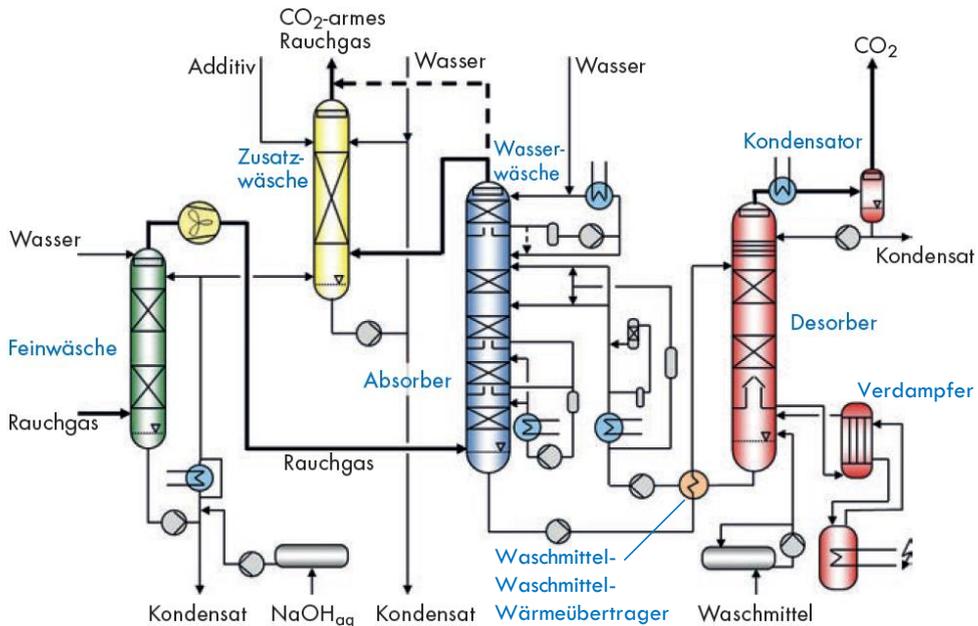


Abbildung 8-2: Prozessflussbild der aminbasierten CO<sub>2</sub>-Wäsche in Niederaussem [143]

### Vergleich zwischen chemischer Absorption und membranbasierter Abtrennung

Hinsichtlich des Betriebsverhaltens unterscheiden sich die chemische Absorption und die membranbasierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung signifikant. In Tabelle 8-1 werden die wichtigsten Eigenschaften im Betriebsverhalten sowie Auswirkungen auf den Kraftwerksprozess der beiden Abtrenntechniken miteinander verglichen.

Die chemische Absorption besteht aus ein bis zwei Absorberkolonnen, die zusammen mit der Waschmittelumlaufrate und der Desorbertemperatur auf einen bestimmten Betriebspunkt abgestimmt ist. Änderungen in den Rauchgaseigenschaften – sei es ein anderer Volumenstrom oder eine geänderte Zusammensetzung – können daher nur moderat aufgefangen werden [145]. Die Reaktion auf Veränderungen erfolgt abhängig von der Waschmittelumlauf rate innerhalb von 5 bis 15 Minuten bei der chemischen Absorption [145]. Dagegen reagiert die Membran sofort auf Änderungen im Partialdruck oder der Überströmungsgeschwindigkeit. Dank des modularen Aufbaus ist die Flexibilität der Gastrennung mittels Membranen hoch [145]. Da der Abtrennprozess mittels Membranen bei Umgebungstemperatur abläuft und lediglich die Kompressoren anfahren müssen, ist die Anfahrzeit mit ungefähr 10 Minuten

extrem schnell. Im Vergleich dazu müssen bei der chemischen Absorption Waschmittellaufrate und Desorbtemperatur eingestellt werden, sodass mindestens eine Stunde für den Anfahrvorgang benötigt wird.

Tabelle 8-1: Technischer Vergleich der CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas mittels chemischer Absorption und Membranen; Daten aus [10; 128; 141; 145; 146; 147; 148]

Trenntechnik	Einheit	Chemische Absorption	Membran
Flexibilität im Betrieb	[-]	Moderat	Hoch (Limitiert durch CO <sub>2</sub> -Partialdruck)
Reaktion auf Änderungen	[-]	Schnell (5 bis 15 min)	Sofort
Anfahrzeit	[-]	1 h	Schnell (10 min)
Teillastbetrieb	[%]	30	10
Erweiterbarkeit	[-]	Moderat	Sehr hoch (modular)
Umweltgefährdung	[-]	Moderat (Emission von Aminen und Degradationsprodukten)*	Niedrig
Kontrollbedarf	[-]	Hoch	Niedrig
Eingriff in das Kraftwerk	[-]	Moderat (Dampf-abzapfung)	Niedrig
Spezifischer Energiebedarf	[GJ·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup> ]	2,8 bis 6 (Regenerationswärme)	0,5 bis 6
Typ. CO <sub>2</sub> -Abtrenngrade	[%]	80 bis 95	60 bis 90
Typ. CO <sub>2</sub> -Reinheiten	[mol-%]	> 95	80 bis 95
Stromgestehungskosten	[ct·kWh <sup>-1</sup> ]	5,5 bis 9	7 bis 8,8
CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten	[€·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup> ]	38,7 bis 64,3	36 bis 66
Entwicklungsphase	Stand: 6/2015	Demonstrationsanlage (SaskPower)	Pilotanlage (MTR)

\* Aktueller Forschungsschwerpunkt, zum Beispiel an der CO<sub>2</sub>-Wäsche in Niederaussem [141]

Der modulare Aufbau der Membrantrenntechnik ermöglicht es auch, in einen sehr niedrigen Teillastbetrieb von 10 % der Nennleistung zu gehen. Dabei ist darauf zu achten, dass der Massenstrom in den CO<sub>2</sub>-Kompressoren mindestens 70 % des Nennmassenstroms betragen muss [149]. Somit sind dort mehrere Verdichterstränge nebeneinander zu installieren. Allerdings können konventionelle Kraftwerk jetzt und in näherer Zukunft nicht in diesem Teillastbereich betrieben werden. Daher ist die chemische Absorption, die einen Teillastbetrieb von 30 % schafft [145], nicht im Nachteil, da das Optimierungspotential bezüglich der Minimallast von Steinkohlekraftwerken voraussichtlich bei 20 % der elektrischen Nennleistung liegt [62]. Ein weiterer Vorteil der modularen Bauweise der membranbasierten CO<sub>2</sub>-Abtrennung ist die einfache Erweiterbarkeit, da lediglich Module in den Trennstufen zugeschaltet werden müssen. Allerdings sind die Leistungsgrenzen der übrigen Anlagenkomponenten zu berücksichtigen, sodass diese Komponenten gegebenenfalls ebenso um parallelgeschaltete Einheiten erweitert werden müssen.

Die bei der chemischen Absorption eingesetzten aminbasierten Waschmittel und ihre Degradationsprodukte können emittiert werden. Aus diesen Gründen ist die Umweltgefährdung gegenüber dem membranbasierten Abtrennprozess, der ohne Chemikalien auskommt, höher. Gleichzeitig bedeutet der Umgang mit Chemikalien aus den genannten Gründen einen höheren Kontrollbedarf, da Analysen der Gas- und Waschmittelzusammensetzung durchgeführt beziehungsweise überwacht werden müssen.

Der Eingriff in den konventionellen Kraftwerksprozess ist bei der chemischen Absorption höher als bei der membranbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennung. Zur Regeneration des Waschmittels muss Wasserdampf zwischen der Mitteldruck- und Niederdruckturbine des Wasser-Dampf-Kreislaufs abgezapft werden. Der am IEK-3 entwickelte und in Kapitel 2.5.3 vorgestellte membranbasierte Abtrennprozess kann als reine End-of-Pipe-Technik eingesetzt werden. Er benötigt lediglich einen Teil des im Kraftwerk produzierten elektrischen Stroms zum Antreiben der Kompressoren und Kühlwasser für die Wärmeübertrager der Zwischenkühlung. Der spezifische Energiebedarf der chemischen Absorption liegt für die Regeneration des Waschmittels im Desorber bei 2,8 bis  $6 \text{ GJ} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  [141; 147]. Hinzu kommt noch die Energie für die Kompression des  $\text{CO}_2$ -Produktstroms. Für die  $\text{CO}_2$ -Abtrennung mittels Membranen beläuft sich der spezifische Energiebedarf auf ca. 0,5 bis  $6 \text{ GJ} \cdot \text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$  [145].

Typischerweise kann mit der chemischen Absorption eine hohe  $\text{CO}_2$ -Reinheit von mehr als 95 mol-% erzielt werden. Je nach Anforderung kann auch eine  $\text{CO}_2$ -Reinheit von 99,99 mol-% erreicht werden, da nur der im Desorber neben dem freigesetzten  $\text{CO}_2$  verdampfende Teil des Wassers des Waschmittels in einem Kondensator vom  $\text{CO}_2$ -Produktstrom abgetrennt werden muss [142, S. 300]. Eine hohe  $\text{CO}_2$ -Reinheit von mehr als 95 mol-% ist mit einem membranbasierten Abtrennprozess nur mit einer mehrstufigen Verschaltung möglich. Der Vorteil der chemischen Absorption gegenüber der membranbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennung liegt in dem gleichzeitig hohen, erreichbaren  $\text{CO}_2$ -Abtrenngrad von typischerweise 90 %. Auch diese Abtrenngrade sind in Kombination mit einer hohen  $\text{CO}_2$ -Reinheit mittels membranbasierter  $\text{CO}_2$ -Abtrennung möglich, allerdings besteht je Trennstufe ein Zielkonflikt zwischen beiden Größen, sodass eine Maximierung beider Größen nur durch geeignete Verschaltung erzielbar ist, die einen höheren apparativen Aufwand bedeutet.

Ein großer Vorteil der chemischen Absorption gegenüber der membranbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennung ist der Entwicklungsstand des Prozesses. In Kanada betreibt SaskPower seit Oktober 2014 eine aminbasierte  $\text{CO}_2$ -Wäsche für einen Rauchgasstrom, der einer elektrischen Leistung von  $100 \text{ MW}_{\text{el}}$  entspricht – also eine  $\text{CO}_2$ -Wäsche im Kraftwerksmaßstab [128]. Dagegen ist die seit 2010 im Betrieb befindliche Pilotanlage von MTR, die für einen Teilrauchgasstrom ausgelegt ist, der 1 MW elektrischer Leistung entspricht, um den Faktor 100 kleiner. Außerdem ist die Erfahrung mit einer ähnlichen, aminbasierten chemischen Absorption größer, da auf diese Weise im Girbotol-Verfahren  $\text{CO}_2$  aus Erdgas abgetrennt wird.

Zusammenfassend bietet die membranbasierte Abtrenntechnik hinsichtlich des Betriebsverhaltens viele Vorteile gegenüber der chemischen Absorption. Die Reaktion auf Änderungen im Prozess ist schneller und auf geänderte Bedingungen kann flexibel reagiert werden. Die Anfahrzeit ist damit ebenfalls geringer. Dank des modularen Aufbaus ist ein sehr niedrigerer Teillastbetrieb von bis zu 10 % der elektrischen Nennleistung möglich wohingegen der Absorptionsprozess nur bis ca. 30 % Teillast betriebsfähig ist. Der modulare Aufbau erlaubt auch eine einfache Erweiterung des Abtrennprozesses im Falle der membranbasierten  $\text{CO}_2$ -Abtrennung. Er kommt weiterhin ohne Chemikalien aus, was sowohl den Kontrollbedarf gegenüber der chemischen Absorption mindert als auch die Umweltgefährdung verringert.

### 8.3 Zusammensetzung der verschiedenen Steinkohlen

Für die Berechnung der Rauchgaszusammensetzung in der vorliegenden Arbeit wird die Zusammensetzung der Steinkohle „Kleinkopje“ gemäß Tabelle 8-2 zugrunde gelegt. Um von den in [64] angegebenen CO<sub>2</sub>-Stoffmengenanteilen bei Teillast auf die Luftverhältnisse bei der Verbrennung unter Teillast schließen zu können, wird bei der Bilanzierung der Verbrennung die in [64] angegebene Kohlezusammensetzung verwendet, die ebenfalls in Tabelle 8-2 aufgelistet ist.

Tabelle 8-2: Zusammensetzung und unterer Heizwert der verwendeten Steinkohlen

Steinkohle		„Kleinkopje“	Kohle aus [64]
Unterer Heizwert [kJ·kg <sup>-1</sup> ]		25	25,1
Massenanteil [%]			
Kohlenstoff	C	65,5	66,1
Wasserstoff	H	3,5	3,83
Sauerstoff	O	7,4	6,6
Stickstoff	N	1,5	1,6
Schwefel	S	0,6	0,57
Feuchtegehalt	H <sub>2</sub> O	7,3	7,8
Asche		14,2	13,5

### 8.4 Umrechnung der Diffusionskoeffizienten

Für ideale Gase entsprechen die Maxwell-Stefan-Diffusionskoeffizienten  $\mathcal{D}_{ij}$  den binären Diffusionskoeffizienten  $\mathcal{D}_{ij}$  [94, S. 450]. Diese sind abhängig von der Temperatur  $T$  und vom Druck  $p$  und können über die Formel der Gl. 8-1 aus der Chapman-Enskog kinetischen Theorie abgeleitet werden [75 S. 526; 150 S. 539].

$$\mathcal{D}_{ij} = \mathcal{D}_{ij} = 1,8583 \cdot 10^{-3} \cdot \sqrt{T^3 \cdot \left( \frac{1}{M_i} + \frac{1}{M_j} \right)} \cdot \frac{1}{p \cdot \sigma_{ij}^2 \cdot \Omega_{\mathcal{D},ij}} \quad \text{Gl. 8-1}$$

Hier stehen  $T$  für die Temperatur,  $M_i$  beziehungsweise  $M_j$  für die Molmasse der Komponente  $i$  und  $j$ ,  $p$  für den Druck,  $\sigma_{ij}$  für den Kollisionsdurchmesser und  $\Omega_{\mathcal{D},ij}$  das Kollisionsintegral der Diffusion. Die Kollisionsdurchmesser und Kollisionsintegrale der Stoffpaare  $i$  und  $j$  werden über die Gl. 8-2 bis Gl. 8-6 berechnet.

$$\sigma_{ij} = \frac{1}{2} \cdot (\sigma_i + \sigma_j) \cdot \xi^{-1/6} \quad \text{Gl. 8-2}$$

$$\varepsilon_{ij}/k = \sqrt{(\varepsilon_i/k) \cdot (\varepsilon_j/k)} \cdot \xi^2 \quad \text{Gl. 8-3}$$

$$\xi = 1 + \frac{\sqrt{2}}{2} \cdot \frac{\alpha_n}{\sigma_n^3} \cdot t_p^* \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_n}} \quad \text{Gl. 8-4}$$

$$T_{ij}^* = T / (\varepsilon_{ij}/k) \quad \text{Gl. 8-5}$$

$$\Omega_{\mathcal{D},ij} = f(T_{ij}^*) \quad \text{Gl. 8-6}$$

In Gl. 8-3 und Gl. 8-5 steht  $k$  für die Boltzmann-Konstante  $k = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ . Das Kollisionsintegral der Diffusion  $\Omega_{2,ij}$  ist für verschiedene dimensionslose Temperaturen  $T_{ij}^*$  in [150 S. 1126] tabelliert. Die Stoffparameter der fünf Komponenten des Rauchgasgemisches zur Berechnung der Maxwell-Stefan-Diffusionskoeffizienten sind in Tabelle 8-3 tabelliert.

Tabelle 8-3: Parameter zur Bestimmung der binären Diffusionskoeffizienten  $\mathcal{D}_{ij}$

Größe	Symbol	Einheit	CO <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	O <sub>2</sub>	Ar	Quelle
Molmasse	$M_i$	g mol <sup>-1</sup>	44,01	28	18,02	32	39,95	[151]
Moleküldurchmesser	$\sigma_i$	Å	3,996	3,681	2,65	3,433	3,418	[150]
Tiefe des Potentialwells im Lennard-Jones-Potential in Bezug auf die Boltzmann-Konstante	$\epsilon_i/k$	K	190	91,5	380	113	124	[150]
Polarisierbarkeit der unpolaren Komponente	$\alpha_n$	Å <sup>3</sup>	2,65	1,76	-	1,6	1,63	[150; 152]
Parameter des Stockmayer-Potentials der polaren Komponente	$t_p^*$	-	-	-	1,2	-	-	[150]

Vereinfachend wird in ANSYS® FLUENT® angenommen, dass alle Stoffe unpolar sind, da sonst der Korrekturfaktor  $\xi$  für die Interaktion zwischen polarer und unpolarer Komponente, der über Gl. 8-4 berechnet wird, berücksichtigt werden müsste [150 S. 600]. Die Abweichungen zwischen den Diffusionskoeffizienten mit und ohne Berücksichtigung der Polarität beträgt circa 3 %. Zur Berechnung der  $\mathcal{D}_{ij}$  werden in ANSYS® FLUENT® daher lediglich die Parameter des Lennard-Jones-Potentials  $\sigma$  und  $\epsilon/k$  der einzelnen Stoffe aus Tabelle 8-3 verwendet.

Die Diffusionskoeffizienten des verallgemeinerten Fick'schen Gesetzes  $D_{ij}$  lassen sich aus den binären Diffusionskoeffizienten  $\mathcal{D}_{ij}$  über Gl. 8-7 herleiten [77].

$$[D] = [B]^{-1} \cdot [\Gamma] \tag{Gl. 8-7}$$

Hierbei beinhaltet die Matrix  $[D]$  die Diffusionskoeffizienten des verallgemeinerten Fick'schen Gesetzes  $D_{ij}$ . Die Matrix  $[B]$  setzt sich aus den Elementen der Gleichungen Gl. 8-8 und Gl. 8-9 zusammen, welche mit den Inversen der binären Diffusionskoeffizienten  $\mathcal{D}_{ij}$  gebildet werden [77]. Die Matrix  $[\Gamma]$  enthält thermodynamische Faktoren, die die Nicht-Idealität der Gas Mischung berücksichtigen. Diese thermodynamischen Faktoren werden über die in Gl. 8-10 ausgedrückte Formel bestimmt. Aufgrund der moderaten Drücke von maximal 4 bar wird in der vorliegenden Arbeit ideales Gas angenommen und die Matrix der thermodynamischen Faktoren  $[\Gamma]$  wird zur Einheitsmatrix.

$$B_{ij} = \frac{x_i}{\mathcal{D}_{in}} + \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq i}}^n \frac{x_k}{\mathcal{D}_{ik}}, \tag{Gl. 8-8}$$

$$B_{ij(i \neq j)} = x_i \cdot \left( \frac{1}{\mathcal{D}_{in}} - \frac{1}{\mathcal{D}_{ij}} \right) \tag{Gl. 8-9}$$

$$\Gamma_{ij} = \delta_{ij} + x_j \cdot \frac{\partial \ln Y_i}{\partial x_j} \quad \text{Gl. 8-10}$$

In Gl. 8-10 ist  $\delta_{ij}$  das Kronecker-Delta, welches für  $i=j$  den Wert eins und sonst den Wert null annimmt und  $y_i$  steht für den Aktivitätskoeffizienten der Komponente  $i$ .

## 8.5 Matrixrechnung mit ungeradem Exponenten

Wird eine Sherwood-Korrelation für ein Mehrkomponentengemisch gemäß Gl. 3-23 nach der Matrix der Stoffübergangskoeffizienten  $[k]$  aufgelöst, ergibt sich folgende Abhängigkeit von den Diffusionskoeffizienten des verallgemeinerten Fick'schen Gesetzes  $[D]$ :

$$[k] = VF \cdot [D]^{x_{\text{reell}}} \quad \text{Gl. 8-11}$$

Hierbei ist  $VF$  ein skalarer Vorfaktor, der sich durch Umstellung der Gl. 3-23 ergibt. Somit wird in Gl. 8-11 eine Matrix mit einem reellen Exponenten  $x_{\text{reell}}$  potenziert. Es muss also nach Gl. 8-12 eine Matrix  $[\tilde{D}]$  gefunden werden, die der potenzierten Matrix  $[D]$  entspricht:

$$[D]^{x_{\text{reell}}} = [\tilde{D}] \quad \text{Gl. 8-12}$$

Die exakte Lösung der Gl. 8-12 erfolgt über die Berechnung der Diagonalmatrix  $[A]$  zur Matrix  $[D]$ . Gemäß Gl. 8-13 werden die Einträge auf der Diagonalen der Diagonalmatrix, die den Eigenwerten der Matrix  $[D]$  entsprechen, mit dem reellen Exponenten  $x_{\text{reell}}$  potenziert und die Diagonalmatrix wird rücktransformiert mit der Transformationsmatrix  $[T]$ . Die Spalten der Transformationsmatrix entsprechen dabei den Eigenvektoren der Matrix  $[D]$ .

$$[D]^{x_{\text{reell}}} = [T] \cdot [A]^{x_{\text{reell}}} \cdot [T]^{-1} = [\tilde{D}] \quad \text{Gl. 8-13}$$

Dieser Lösungsweg setzt allerdings die Diagonalisierbarkeit der Matrix  $[D]$  voraus und ergibt nur für positive Eigenwerte sinnvolle Ergebnisse. Weiterhin ist der Lösungsweg für eine iterative Berechnung in Aspen Plus<sup>®</sup> zu aufwendig, da für jede Zelle des Membranmoduls die Diagonalmatrix und die Transformationsmatrix über die Nullstellen des charakteristischen Polynoms der Matrix  $[D]$  berechnet werden müsste. Daher wird eine Näherungslösung verwendet, die zu geringen Abweichungen führt, falls die Diagonaleinträge der Matrix  $[D]$  viel größer als die übrigen Einträge sind [153]. Dies ist für die Matrix der Diffusionskoeffizienten des verallgemeinerten Fick'schen Gesetzes  $[D]$  der Fall. Die Einträge der Matrix  $[\tilde{D}]$  der Näherungslösung ergeben sich aus den Gl. 8-14 und Gl. 8-15 [153].

$$\tilde{D}_{ii} = D_{ii}^{x_{\text{reell}}} \quad \text{Gl. 8-14}$$

$$\tilde{D}_{ij} = \frac{D_{ii}^{x_{\text{reell}}} - D_{jj}^{x_{\text{reell}}}}{D_{ii} - D_{jj}} \quad \text{Gl. 8-15}$$

## 8.6 Formelübersicht zur Bestimmung der Rohrreibungszahl

Die Rohrreibungszahl  $\lambda$  ist im Allgemeinen von der Strömung und der Beschaffung des Rohres abhängig. Die Strömung wird über die Reynoldszahl  $Re$  und der Zustand des Rohres über die relative Rauigkeit  $k/D$  – also die Rauigkeit des Rohres  $k$  bezogen auf den Rohr-

durchmesser  $D$  – charakterisiert. Die Reynoldszahl wird hierbei gemäß Gl. 3-25 mit dem Rohrdurchmesser als charakteristische Länge berechnet. Die Strömung wird gemäß der Bedingungen in Tabelle 8-4 in verschiedene Bereiche unterteilt, für die jeweils eine in Tabelle 8-4 beschriebene Formel für die Rohrreibungszahl experimentell ermittelt wurde.

Tabelle 8-4: Rohrreibungszahl  $\lambda$  für hydraulisch glatte und raue Rohre in laminarer und turbulenter Strömung als Funktion der Reynoldszahl  $Re$  und der relativen Rauigkeit  $k/D$  [154; 155]

Formel	Bedingung	Strömung	
<b>Hagen-Poiseuille:</b> $\lambda = 64 \cdot Re^{-1}$	$0 < Re < 2300$	laminar, hydraulisch glatt	Gl. 8-16
<b>Blasius:</b> $\lambda = 0,3164 \cdot Re^{-0,25}$	$Re < 1 \cdot 10^5$ $k < 1 \text{ mm}$	turbulent, hydraulisch glatt	Gl. 8-17
<b>Prandtl:</b> $\frac{1}{\sqrt{\lambda}} = -2 \cdot \log_{10} \left( \frac{2,51}{Re \cdot \sqrt{\lambda}} \right)$	$1 \cdot 10^5 < Re < 1 \cdot 10^7$ $k < 1 \text{ mm}$	turbulent, hydraulisch glatt	Gl. 8-18
<b>Colebrook:</b> $\frac{1}{\sqrt{\lambda}} = -2 \cdot \log_{10} \left( \frac{k}{3,71 \cdot D} + \frac{2,51}{Re \cdot \sqrt{\lambda}} \right)$	$Re \cdot \sqrt{\lambda} \cdot k/D \leq 200$	turbulent, Übergangsbereich von glatt zu rau	Gl. 8-19
<b>Nikuradse, von Karman:</b> $\frac{1}{\sqrt{\lambda}} = -2 \cdot \log_{10} \left( \frac{k}{3,71 \cdot D} \right)$	$Re \cdot \sqrt{\lambda} \cdot k/D > 200$ $k > 1 \text{ mm}$	turbulent, hydraulisch rau	Gl. 8-20

Bei der Auslegung der Rohrleitungen für den Zu- beziehungsweise Ablauf aus dem Membranmodul liegen in der vorliegenden Arbeit die Reynoldszahlen stets unter  $1 \cdot 10^6$ . Während handelsübliche Stahlrohre eine Rauigkeit von  $k = 0,045 \text{ mm}$  besitzen, wird als konservative Abschätzung eine Rauigkeit von  $k = 0,15 \text{ mm}$  angenommen, welche einem mäßig verrostetem Rohr beziehungsweise einem Rohr nach mehrjährigem Betrieb entspricht [90; 156, S. 533]. Sogar mit dieser konservativen Annahme liegt die Rauigkeit unter dem Grenzwert von  $1 \text{ mm}$ , sodass das Rohr als hydraulisch glatt angesehen werden kann. Es kommen also Gl. 8-17 und Gl. 8-18 für die Auslegung in Frage. Da die Näherungslösung von Blasius eine explizite Gleichung ist und die Abweichung zur Berechnung nach Prandtl im erwähnten Reynoldszahl-Bereich wie in Abbildung 8-3 dargestellt maximal  $4,3 \%$  beträgt, wird für die Auslegung der Rohrleitungen ausschließlich Gl. 8-17 nach Blasius verwendet.

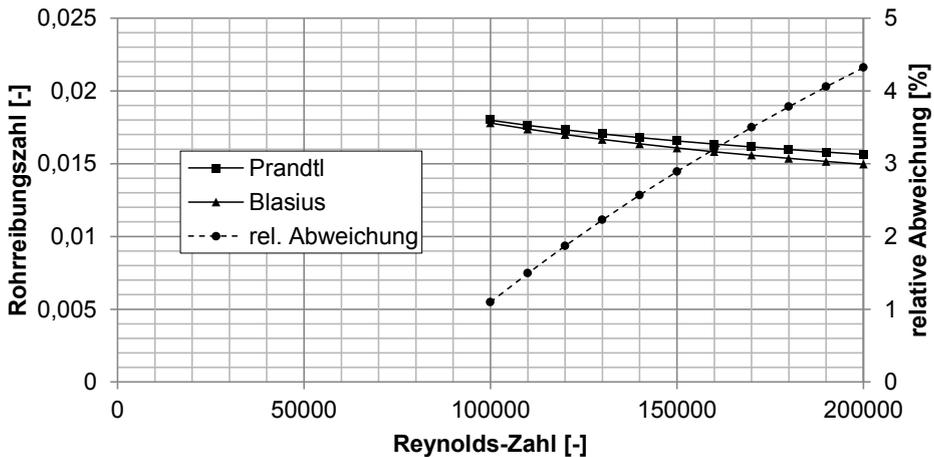


Abbildung 8-3: Vergleich zwischen den Berechnungsmethoden der Rohrreibungszahl nach Prandtl und Blasius für einen Bereich der Reynoldszahl von  $1 \cdot 10^5$  bis  $2 \cdot 10^5$  und relative Abweichung der Berechnung mit der Formel nach Prandtl gegenüber jener mit der Formel nach Blasius

### 8.7 Lösungsprozess der Bilanzgleichungen in ANSYS® FLUENT®

Für die Lösung der Bilanzgleichungen müssen diese diskretisiert und linearisiert werden. Bei der Diskretisierung der Bilanzgleichungen wird jede Bilanzgleichung in jedem Kontrollvolumen integriert. Für den Akkumulations- und den Quellterm ist das Kontrollvolumen  $V$  der Integrand und bei dem Konvektionsterm und der verallgemeinerten Leitung wird nach Anwendung des Gauß'schen Integralsatzes<sup>13</sup> über die Oberfläche des Kontrollvolumens integriert. Die Integration über die Oberfläche entspricht der Summation über alle Flächen der Zelle  $A_f$ . Es folgt die allgemeine diskretisierte Bilanzgleichung gemäß Gl. 8-21 in Anlehnung an [89, S. 609].

$$\frac{\partial \rho \cdot \phi}{\partial t} \cdot V = - \sum_f^{\text{Anz. Flächen}} (\rho_f \cdot \phi_f \cdot \vec{v}_f \cdot A_f + \Gamma_\phi \cdot \nabla \phi_f \cdot A_f) + S_\phi \cdot V \tag{Gl. 8-21}$$

Die Werte der skalaren Größe  $\phi$  an den Zelloberflächen  $\phi_f$  werden über die Werte dieser Größe im Zellmittelpunkt ermittelt. Hierzu werden in der vorliegenden Arbeit Interpolationsverfahren erster und zweiter Ordnung angewandt. Beide Verfahren nutzen Zellwerte von Zellen, die sich stromaufwärts gegenüber der Fläche befinden und sind damit den sogenannten Upwind-Verfahren zuzuordnen. Bei dem Upwind-Verfahren erster Ordnung wird angenommen, dass sich der Wert bis zur Zelloberfläche gegenüber dem Zellmittelpunkt nicht ändert. Das Verfahren zweiter Ordnung nutzt die örtliche Änderung  $\nabla \phi$  und den Wert des Zellmittelpunktes und berechnet über den Abstandvektor  $\vec{r}$  zwischen Zellmittelpunkt und Mittelpunkt

<sup>13</sup> Volumenintegrale können über den Gauß'schen Integralsatz in Oberflächenintegrale überführt werden. Der Gauß'sche Integralsatz für ein beliebiges, stetiges und an der gesamten Oberfläche  $A$  eines Volumens  $V$  differenzierbares Vektorfeld  $\vec{F}$  lautet:  $\int_V \nabla \vec{F} \cdot dV = \oint_A \vec{F} \cdot dA$  [157].

der Zelloberfläche den Wert der skalaren Größe an der Oberfläche gemäß Gl. 8-22 [89, S. 613].

$$\phi_{f, 2. \text{ Ordnung}} = \phi + \nabla\phi \cdot \vec{r} \quad \text{Gl. 8-22}$$

Die Bestimmung der örtlichen Gradienten erfolgt über die Differenz der skalaren Größe zwischen dem Zellmittelpunkt der Zelle und jedem Zellmittelpunkt der Nachbarzellen sowie dem Abstand zwischen diesen Zellmittelpunkten. Es wird also eine lineare Änderung angenommen, wobei die Änderung zu jeder Nachbarzelle gewichtet wird. Der Gewichtungsfaktor wird über die Zerlegung der Abstandmatrix gewonnen [89, S. 621].

Bei den Strömungslösern wird zwischen druck- und dichte-basierten Strömungslösern unterschieden. Der druckbasierte ist eher für inkompressible Strömungen und der dichte-basierte Strömungslöser ist eher für hohe Geschwindigkeiten und kompressible Strömungen vorgesehen. Da die Strömung in der vorliegenden Arbeit als inkompressibel angesehen werden kann, wird der druckbasierte Strömungslöser verwendet. Dieser kann wiederum als segregierter oder gekoppelter Löser realisiert werden. Der gekoppelte Löser löst die Massen- und Impulsbilanzgleichungen gleichzeitig. Dadurch verringert sich die Anzahl an Iterationen bis die Lösung konvergiert. Allerdings ist der erforderliche Arbeitsspeicher<sup>14</sup> um den Faktor 1,5 bis 2 höher, sodass in der vorliegenden Arbeit der segregierte Löser verwendet wird. Dieser löst die Bilanzgleichungen hintereinander. Der segregierte, druckbasierte Strömungslöser bestimmt das Geschwindigkeitsfeld über die Impulsgleichungen, löst eine Druckgleichung beziehungsweise Druckkorrekturgleichung und wendet die Druckkorrektur zur Bestimmung neuer Massenströme, Drücke und Geschwindigkeiten an. Danach werden die übrigen skalaren Größen wie Energie, turbulente kinetische Energie und so weiter berechnet. Die Berechnungsfolge wird so lange wiederholt, bis die Lösung konvergiert ist oder eine bestimmte Anzahl an Iterationen durchgeführt wurde. Die Lösung der n-ten Iteration wird gemäß Gl. 8-23 modifiziert und als Startlösung für die n+1-te Iteration verwendet. Hierbei dient der sogenannte Unter-Relaxationsfaktor  $\alpha$  dazu, die Änderung  $\Delta\phi$  der Größe  $\phi$  zwischen zwei Iterationen zu kontrollieren [89, S. 631f].

$$\phi_{n+1} = \phi_n + \alpha \cdot \Delta\phi \quad \text{Gl. 8-23}$$

### Vorgabe einer Startlösung

Die Lösung der Strömungssimulation ist schneller erreicht, wenn eine geeignete Startlösung vorgegeben wird. Eine Startlösung für das gesamte Gebiet wird mit der sogenannten Initialisierung bestimmt. In der vorliegenden Arbeit wird die hybride Initialisierung verwendet, bei der die Laplace-Gleichung gemäß Gl. 8-24 gelöst wird [89, S. 661].

$$\nabla^2\varphi = 0 \quad \text{Gl. 8-24}$$

Hier steht  $\varphi$  für das Geschwindigkeitspotential, dessen Gradient der Geschwindigkeitsvektor  $\vec{v}$  ist. Es wird eine Startlösung für das Geschwindigkeitsfeld und das Druckfeld des gesamten Gebietes festgelegt. Die so generierten Werte können nachträglich mit der sogenannten Patch-Funktion korrigiert werden. Sind beispielsweise Massenanteile oder Temperaturen innerhalb eines Teilgebietes durch Überschlagsrechnungen oder vorangegangenen Simulationen bekannt, können diese Werte für das Teilgebiet vom Benutzer vorgegeben werden. Damit ist die Startlösung schon vor der ersten Iteration näher an der finalen Lösung und der Lösungsprozess konvergiert schneller.

<sup>14</sup> Die Simulation des Prototyp-Moduls gemäß Kapitel 4.1 benötigt bereits 33 GB Arbeitsspeicher.

Weiterhin können vor Beginn des Iterationsprozesses an Grenzflächen oder innerhalb von Zellen benutzerdefinierte Profile vorgegeben werden. Über diese Profile können Randbedingungen wie Geschwindigkeits- oder Temperaturprofile an Geometrien festgelegt werden. Beispielsweise reduziert sich damit die Länge einer Zulaufverrohrung, wenn eine ausgebildete Strömung mit ausgebildetem Geschwindigkeitsprofil vorgegeben werden kann.

### **Parallelisierung**

Die Berechnungsdauer wird zusätzlich durch den Einsatz mehrerer, parallel rechnender Prozessoren verkürzt. Für diese Parallelisierung muss das Rechengitter auf die Prozessoren aufgeteilt werden. Diese sogenannte Partitionierung ist am effektivsten, wenn die Berechnungszeit auf allen Prozessoren gleich lange ist. Dies ist gewährleistet, wenn jedem Prozessor gleich viele Zellen zugewiesen werden und jeder Prozessor mit den anderen Prozessoren gleich viele Kommunikationswechsel mit gleichem Datenvolumen durchführt. Dabei sind wenige Kommunikationswechsel mit großem Datenumfang vielen Kommunikationswechseln mit wenig Datenvolumen vorzuziehen. Jedem Prozessor wird maximal eine Partition zugewiesen. Es können verschiedene Partitionierungsmethoden angewandt werden. Die Standardmethode Metis nutzt einen Algorithmus, bei dem feine Graphen zu groben zusammengefasst und anschließend aufgeteilt werden [94, S. 1816]. Dabei findet eine Optimierung nach dem oben genannten Ziel der gleichen Auslastung aller Prozessoren statt, sodass die entstandene Partitionierung meistens schon die beste Qualität hat. Gerade bei geometrisch symmetrischen Bauteilen ist jedoch eine Partitionierungsmethode, die diese Eigenschaft ausnutzt, sinnvoller. Hier besteht die Möglichkeit, Symmetrieebenen als Grenze von Partitionierungen zu wählen.

Die Art der Kommunikationswechsel bei der Benutzung von benutzerdefinierten Funktionen (UDF) ist wichtig für die korrekte Ausführung der UDF. Werden Werte nur eines Prozessors an die UDF übergeben, da Daten eines anderen Prozessors noch nicht kommuniziert wurden, führt dies zu falschen Ergebnissen. Standardmäßig wird bei parallelisierten Rechnungen über einen Hostprozess kommuniziert, welcher die einzelnen Rechenprozessoren verwaltet. Die Kommunikation mittels Message Passing Interface-Standard führt dabei über den nullten Knoten (compute node 01, cn01). Eine Möglichkeit, innerhalb der UDF die Kommunikation zu steuern bieten die globalen Reduktionsmakros. Diese ermöglichen es, die globale Summe, das globale Maximum oder das globale Minimum der Werte aller Prozessoren für ein definiertes Teilgebiet zu bestimmen und das Ergebnis an alle Prozessoren zu übermitteln [158, S. 413].

## **8.8 Zeitliche Entwicklung des Chemical Engineering Plant Cost Index**

Die zeitliche Entwicklung von Preisen spielt in dynamischen Investitionsrechnungen eine wichtige Rolle. Werden für die Abschätzung von Anlagenkosten und sonstiger Preise Werte aus der Literatur übernommen, sind diese Werte auf das jeweilige Bezugsjahr mittels Preisindex umzurechnen. Dazu wird in der vorliegenden Arbeit der Chemical Engineering Plant Cost Index verwendet.

Der Chemical Engineering Plant Cost Index ist ein Inflationsbarometer für die Anlagenkosten der chemischen Industrie und dient der Anpassung der Anlagenkosten von einer Periode in die andere bei Kostenanalysen und -berechnungen. Seine Berechnung erfolgt über eine gewichtete Mittelung aus einem Unterindex für Anlagenkosten, welcher wiederum aus Unterindizes für sieben Anlagengruppen zusammengesetzt ist, sowie aus Unterindizes für die Er-

bauung, Gebäude und Konstruktion und Baukontrolle des betrachteten Jahres [159]. Er wurde im Jahr 1963 eingeführt und für das Basisjahr 1957 auf den Wert 100 gesetzt. Seitdem ist er in der in Abbildung 8-4 dargestellten Weise gestiegen. In den letzten Jahren ergab sich aufgrund der weltweiten Wirtschaftskrise und den daraus resultierenden Preisschwankungen ein uneinheitlicher Verlauf. Die beiden letzten, aktuell frei verfügbaren Jahresmittelwerte für die Jahre 2012 und 2013 liegen bei 584,6 beziehungsweise 567,3. Da in der vorliegenden Arbeit von einer konservativen Kostenberechnung ausgegangen wird, wird die Berechnung für das Jahr 2012 durchgeführt. Diese Annahme ist auch deswegen gerechtfertigt, da in Zukunft mit steigenden Preisen zu rechnen ist, wie der langjährige Verlauf des CEPCI zeigt.

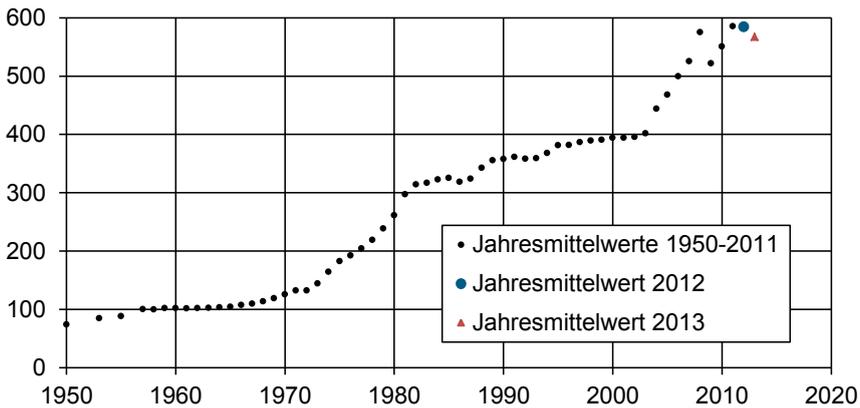


Abbildung 8-4: Verlauf des Chemical Engineering Plant Cost Index (CEPCI) von 1950 bis 2013, Basisjahr des CEPCI: 1957, Basisjahr der vorliegenden Kostenrechnung: 2012 [124; 160]

## 8.9 Ergänzungen zu Kapitel 4

Die Druckverlustcharakteristik für Spacer-gefüllte Kanäle wird für eine Kanalhöhe von 1 mm für physikalische Geschwindigkeiten von 0 bis  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und Drücke im Kanal von 0,1 bar, 0,15 bar, 1 bar, 1,3 bar, 2 bar und 4 bar ausgewertet. Daraus ergeben sich die in Abbildung 8-5 dargestellten Regressionspolynome, deren Gleichungen für jeden Druck ebenfalls aufgeführt sind. Das Bestimmtheitsmaß ist für alle Regressionspolynome  $> 0,999$ .

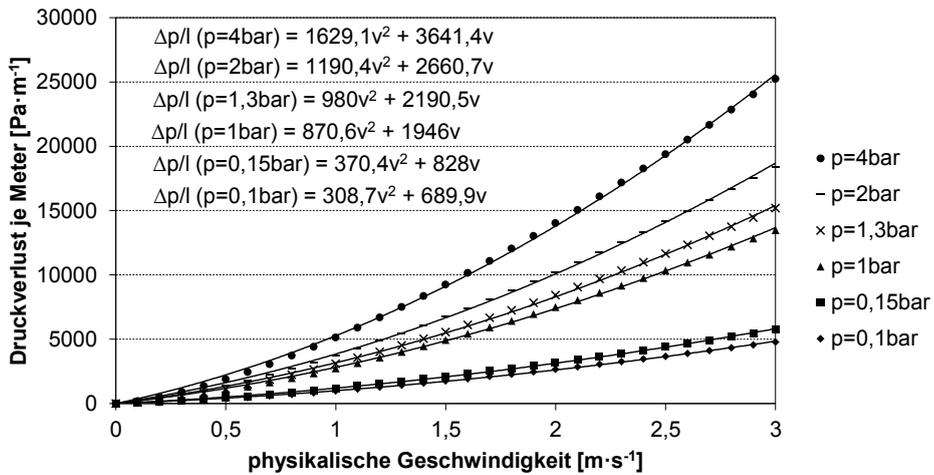


Abbildung 8-5: Druckverlustcharakteristik der Spacer-gefüllten Kanäle für eine Kanalhöhe von 1 mm; ausgewertet für verschiedene Drücke im Kanal; die Markierungen zeigen die Auswertung der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik eines Spacer nach [81]; Linien und Formeln zeigen das zugehörige Regressionspolynom zweiten Grades, aus denen die Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers gewonnen werden

### Benutzerdefinierte Funktion zur Vorgabe eines Geschwindigkeitsprofils am Eintritt

Bei den Strömungssimulationen in ANSYS® FLUENT® besteht die Möglichkeit, Werte oder Profile an definierten Flächen vorzugeben. In der vorliegenden Arbeit wird eine benutzerdefinierte Funktion (UDF) verwendet, um das Geschwindigkeitsprofil einer turbulenten Rohrströmung am Eintritt in das Zulaufrohr vorzugeben. Damit kann dieses Zulaufrohr auf 0,1 m verkürzt abgebildet werden, da sich die Strömung nicht über eine Einlaufstrecke von mehr als 1 m ausbilden muss. Es wird ein Geschwindigkeitsprofil gemäß Gl. 8-25 verwendet [90, S. 158f.]. Der Faktor  $n$  ist abhängig von der Reynoldszahl. Liegt die Reynoldszahl in der Größenordnung  $10^5$ , beträgt er – wie auch in der vorliegenden Arbeit – 7.

$$v(r) = \frac{\bar{v} \cdot (1+n) \cdot (2+n)}{2} \cdot \left(1 - \frac{2r}{d}\right)^n \quad \text{Gl. 8-25}$$

Weiterhin werden die Profile der turbulenten kinetischen Energie  $k$  und der spezifischen Dissipationsrate  $\omega$  vorgegeben. Deren Modellierung kann [158, S. 76ff.] entnommen werden. Die UDF wird durch folgenden Quellcode beschrieben, wobei je nach gewünschter Strömungsgeschwindigkeit der Wert für die mittlere Geschwindigkeit UMEAN angepasst werden muss:

```
#include "udf.h"
#include "para.h"

/* Konstanten */

#define XCENTER 0
```

```

#define YCENTER 0
#define RADIUS 0.018
#define UMEAN 2.3373
#define expo 1./7.
#define VISC 1.73e-05
#define CMU 0.09
#define VKC 0.41

/* Profil der z-Geschwindigkeit */

DEFINE_PROFILE(z_velocity,t,i)
{
  #if (!RP_HOST)
  real radius, x[ND_ND], umax;
  face_t f;
  umax = UMEAN*(expo+1.)*(expo+2.)/2;
  begin_f_loop(f,t)
  {
    F_CENTROID(x,f,t);
    radius=sqrt(pow(x[0]-XCENTER,2)+pow(x[1]-YCENTER,2));
    F_PROFILE(f,t,i) = umax*pow(1.-radius/RADIUS,expo);
  }
  end_f_loop(f,t)
  #endif
}

/* Profil der turbulenten kinetischen Energie */

DEFINE_PROFILE(k_profile,t,i)
{
  real radius, umax, x[ND_ND];
  real ff, utau, knw, kinf;
  face_t f;
  umax = UMEAN*(expo+1.)*(expo+2.)/2;
  ff = 0.045*pow(umax*RADIUS/VISC,-0.25);
  utau=sqrt(ff*pow(umax,2.)/2.0);
  knw=pow(utau,2.)/sqrt(CMU);
  kinf=0.002*pow(umax,2.);
  begin_f_loop(f,t)
  {
    F_CENTROID(x,f,t);
    radius=sqrt(pow(x[0]-XCENTER,2)+pow(x[1]-YCENTER,2));
    F_PROFILE(f,t,i)=kinf+radius/RADIUS*(knw-kinf);
  }
  end_f_loop(f,t)
}

/* Profil der spezifischen turbulenten Dissipationsrate */

DEFINE_PROFILE(dissip_profile,t,i)
{
  real x[ND_ND], radius, umax;
  real ff, utau, knw, kinf;
  real mix, kay;
  face_t f;
  umax = UMEAN*(expo+1.)*(expo+2.)/2;
  ff = 0.045*pow(umax*RADIUS/VISC,-0.25);
  utau=sqrt(ff*pow(umax,2.)/2.0);
  knw=pow(utau,2.)/sqrt(CMU);
  kinf=0.002*pow(umax,2.);
  begin_f_loop(f,t)
  {
    F_CENTROID(x,f,t);
    radius=sqrt(pow(x[0]-XCENTER,2)+pow(x[1]-YCENTER,2));

```

```

kay=kinf+radius/RADIUS*(knw-kinf);
if (VKC*(RADIUS-radius) < 0.085*RADIUS)
    mix = VKC*(RADIUS-radius);
else
    mix = 0.085*RADIUS;
F_PROFILE(f,t,i)=pow(CMU, -0.25)*pow(kay,0.5)/mix;
}
end_f_loop(f,t)
}

```

**Druckverlauf im Membranmodul bei erhöhter Geschwindigkeit**

In Abbildung 8-6 ist der Druckverlauf auf der Feedseite des Membranmoduls für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  dargestellt. Dieser ist 1,25 mm über der Rohrmittelachse in y-Richtung ausgewertet, sodass er im Membranstapel innerhalb eines Feedkanals und nicht auf der Höhe einer Membrantasche liegt. Der Druckverlust in dem 0,1 m langen Zulaufrohr ist bei dieser Strömungsgeschwindigkeit vernachlässigbar. In der Querschnittserweiterung steigt der Druck zunächst an, da die Strömung aufgrund der Erweiterung verzögert wird. Im zweiten Teil der Querschnittserweiterung überwiegt der Druckabfall aufgrund der Verwirbelungen. Bei einer Lauflänge von 0,3 m trifft die Strömung auf die Spacer als Hindernis in dem Feedkanal, sodass sich eine Art Staudruck bildet. Innerhalb des Feedkanals fällt der Druck gemäß der Druckverlustcharakteristik des Spacers ab. Hinter dem Membranstapel ist der Druckverlust hauptsächlich auf die Einschnürung der Strömung am Ende der Querschnittsverjüngung und die Geschwindigkeitszunahme zurückzuführen.

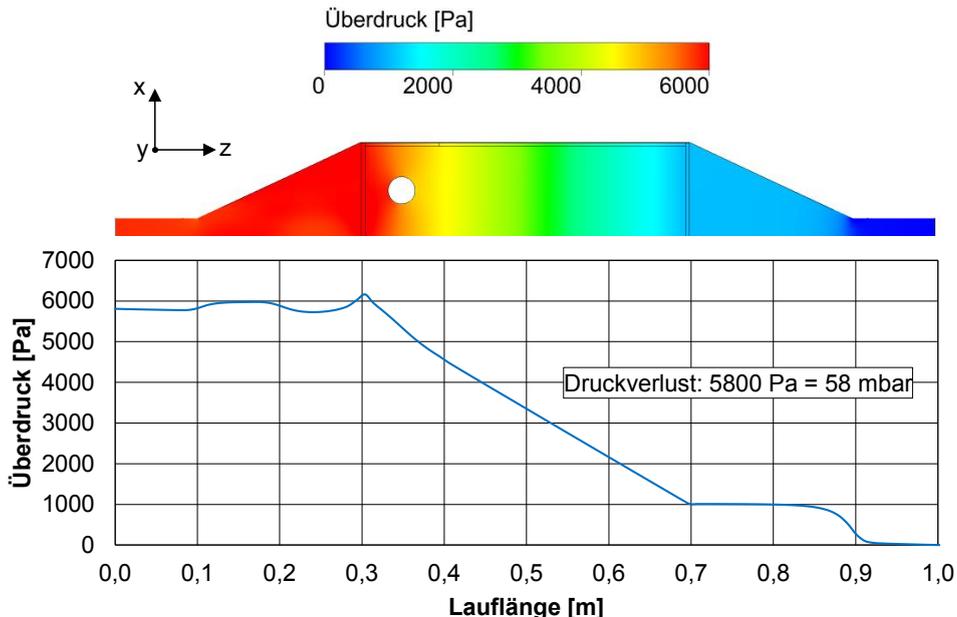


Abbildung 8-6: Druckverlauf auf der Feedseite des Membranmoduls inklusive Zulauf- und Ablaufbereich bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in den Membranstapel von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Überdruck bezogen auf einem Retentatdruck von ca. 4 bar (400000 Pa)

### Strömungsverteilung bei erhöhter Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit

Die Strömungsverteilung bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ist in Abbildung 8-7 dargestellt.

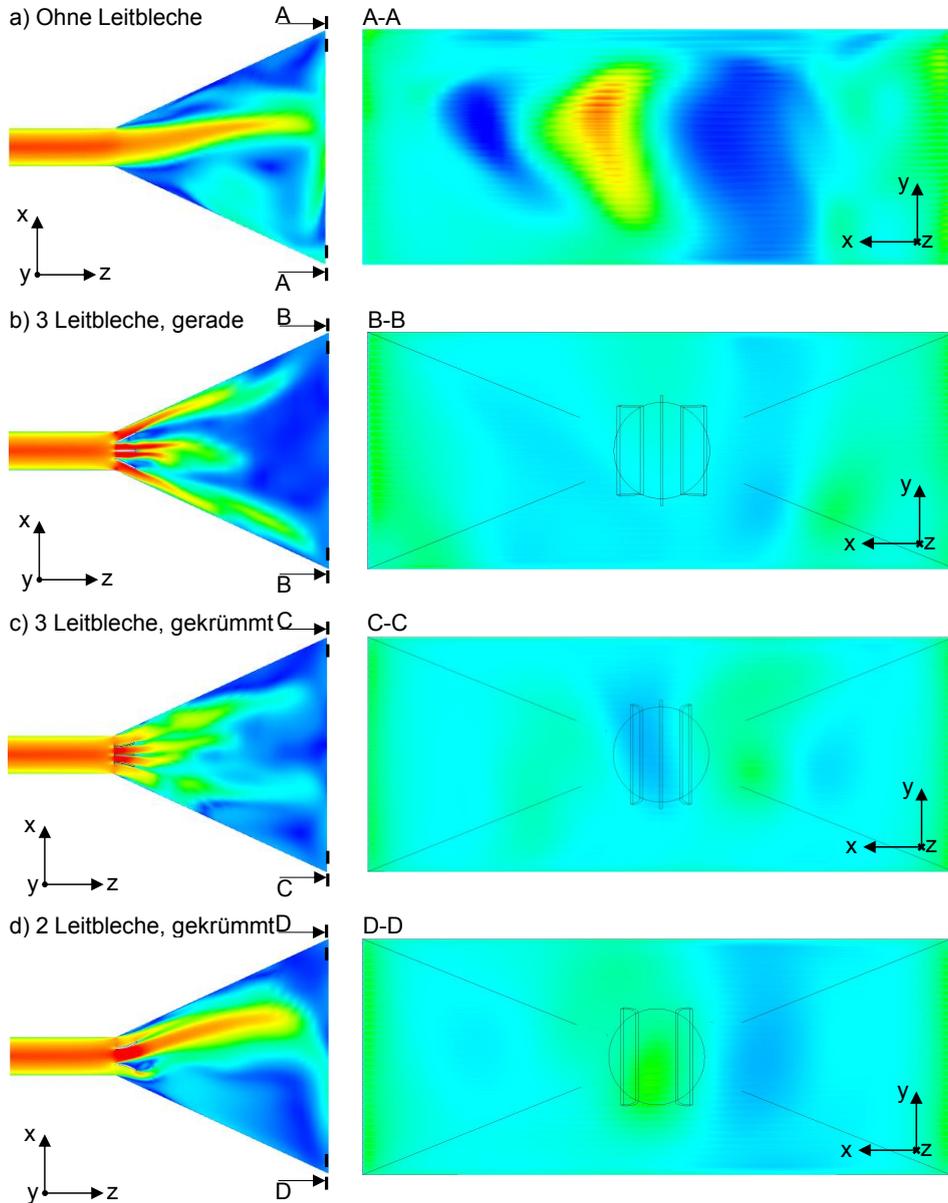
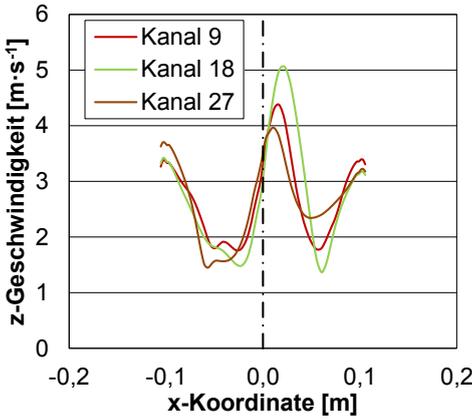


Abbildung 8-7: Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung und Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung der Anströmung des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen

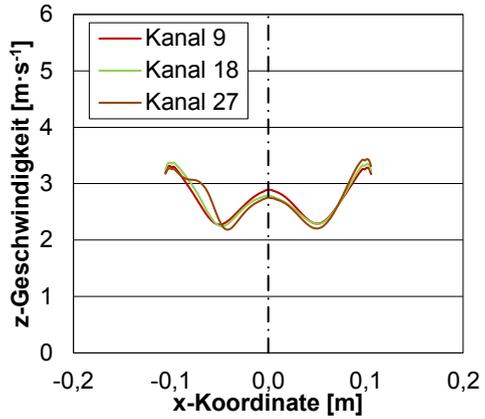
**Strömungsverteilung innerhalb der Feedkanäle**

In Abbildung 8-8 ist die Strömungsverteilung innerhalb dreier Feedkanäle 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels im Prototyp-Modul bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für verschiedene Varianten der Einbauten in der Querschnittserweiterung dargestellt. Wie auch bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  führt der Einsatz von drei Leitblechen, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind, zur homogensten Verteilung innerhalb eines Feedkanals. Die Inhomogenität der Geschwindigkeitsverteilung innerhalb eines Kanals im Prototyp-Modul ohne Leitbleche am Anfang der Querschnittserweiterung kann durch die Leitbleche deutlich gemindert werden.

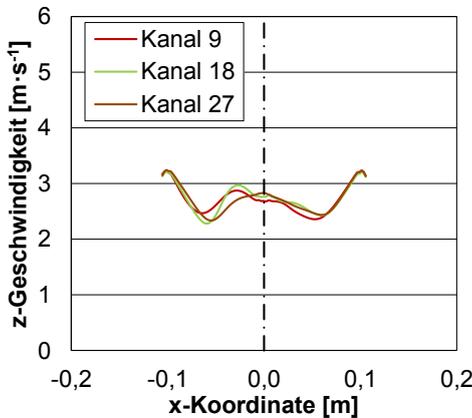
a) Ohne Leitbleche



b) 3 Leitbleche, gerade



c) 3 Leitbleche, gekrümmt



d) 2 Leitbleche, gekrümmt

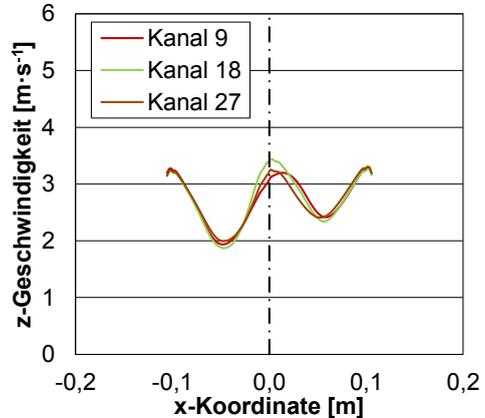


Abbildung 8-8: Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung innerhalb von drei Feedkanälen der Modulmitte – nummeriert von oben nach unten innerhalb des Moduls – 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen

## 8.10 Ergänzungen zu Kapitel 5

### Stoffströme des Referenzfalls

Für den Referenzfall des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses sind die Eigenschaften der wichtigsten Stoffströme in Tabelle 8-5 zusammengefasst.

Tabelle 8-5: Ausgewählte Stoffströme im CO<sub>2</sub>-Abtrennprozess des Referenzfalls

	Rauchgas	Rauchgas nach Trocknung	Feed 1. Trennstufe	Retentat 1. Trennstufe	Permeat 1. Trennstufe	Feed 2. Trennstufe	Rezirkulation	Permeat 2. Trennstufe	CO <sub>2</sub> -Produktstrom
Temperatur	50	25	26,86	26,86	26,86	25	25	29	30
Druck	1,05	1,05	1,075	1,013	0,15	4	1,075	1	110
Normvolumenstrom	1,59·10 <sup>6</sup>	1,41·10 <sup>6</sup>	1,68·10 <sup>6</sup>	1,24·10 <sup>6</sup>	0,44·10 <sup>6</sup>	0,43·10 <sup>6</sup>	0,27·10 <sup>6</sup>	0,16·10 <sup>6</sup>	0,15·10 <sup>6</sup>
Massenstrom	2,07·10 <sup>6</sup>	1,93·10 <sup>6</sup>	2,34·10 <sup>6</sup>	1,61·10 <sup>6</sup>	0,73·10 <sup>6</sup>	0,72·10 <sup>6</sup>	0,41·10 <sup>6</sup>	0,31·10 <sup>6</sup>	0,30·10 <sup>6</sup>
Stoffmengenstrom	70.670	62.905	74.839	55.286	19.553	19.190	11.934	7256	6993
CO <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil	13,5	15,2	19,1	5,2	58,4	59,5	39,7	92,0	95,5
N <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil	70,1	78,8	74,5	89,2	32,9	33,5	52,1	3,0	3,1
H <sub>2</sub> O-Stoffmengenanteil	11,9	1,0	0,9	<0,1	3,3	1,5	0,2	3,7	<0,1
O <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil	3,7	4,1	4,5	4,6	4,4	4,5	6,6	1,1	1,1
Ar-Stoffmengenanteil	0,8	0,9	1,0	1,0	1,0	1,0	1,4	0,3	0,3

### Stromgestehungskosten des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen

In Abbildung 8-9 ist die Aufteilung der Stromgestehungskosten (SGK) des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen (RKW NRW) auf die Investitionskosten, die Betriebs- und Instandhaltungskosten, die Brennstoffkosten und die Zertifikatkosten dargestellt. Insgesamt betragen die SGK für das RKW NRW  $4,75 \text{ ct}\cdot\text{kWh}^{-1}$ . Während die Investitionskosten und die Brennstoffkosten jeweils ungefähr ein Drittel der SGK ausmachen, beträgt der Anteil der Zertifikatkosten 25 % an den Stromgestehungskosten. Der Rest entfällt auf die Betriebs- und Instandhaltungskosten.

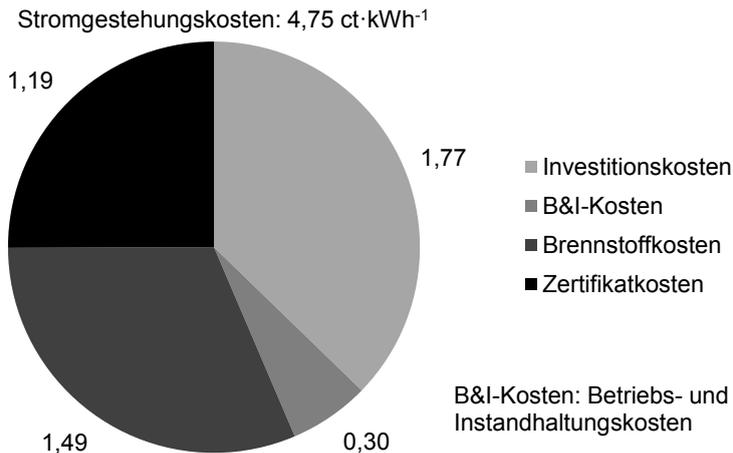


Abbildung 8-9: Zusammensetzung der Stromgestehungskosten aus Investitionskosten, Betriebs- und Instandhaltungskosten, Brennstoffkosten und Zertifikatkosten des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen; Angaben in  $\text{ct}\cdot\text{kWh}^{-1}$

### Maximale Abtrenngrade der zweiten Trennstufe

Ergänzend zu der Analyse des maximalen Abtrenngrades in der ersten Trennstufe für verschiedene Eintrittsgeschwindigkeiten sind in Abbildung 8-10 die  $\text{CO}_2$ -Permeationsströme am Modulende für Eintrittsgeschwindigkeiten von  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $2,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in Abhängigkeit des Abtrenngrades der zweiten Trennstufe dargestellt. Der im Referenzfall geforderte Abtrenngrad der zweiten Trennstufe beträgt ca. 58,5 %. Weiterhin ist die Modullänge zum Erreichen des jeweiligen Abtrenngrades aufgetragen.

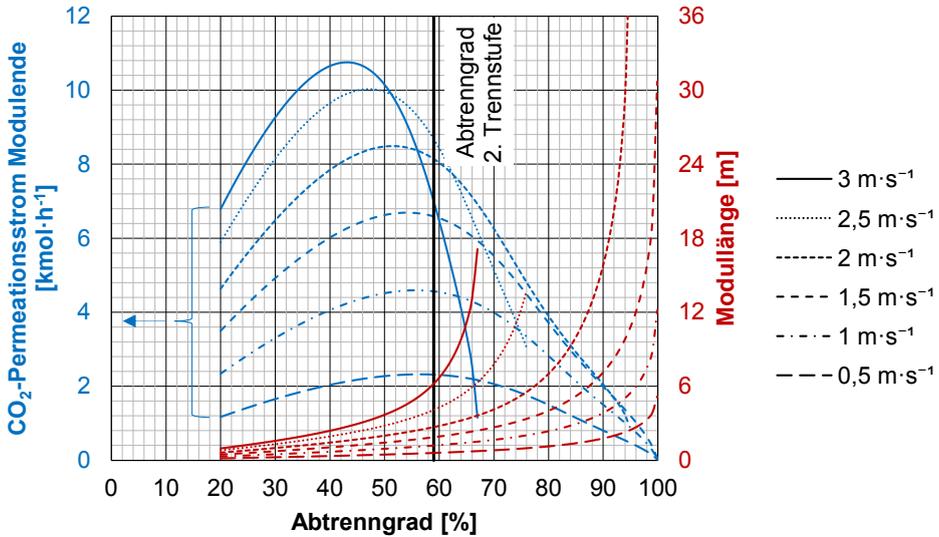


Abbildung 8-10: CO<sub>2</sub>-Permeationsstrom am Modulende der zweiten Trennstufe und zugehörige Modullänge bei variablem Abtrenngrad für Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,5 m·s<sup>-1</sup>, 1 m·s<sup>-1</sup>, 1,5 m·s<sup>-1</sup>, 2 m·s<sup>-1</sup>, 2,5 m·s<sup>-1</sup> und 3 m·s<sup>-1</sup>

### Optimale Eintrittsgeschwindigkeiten der zweiten Trennstufe

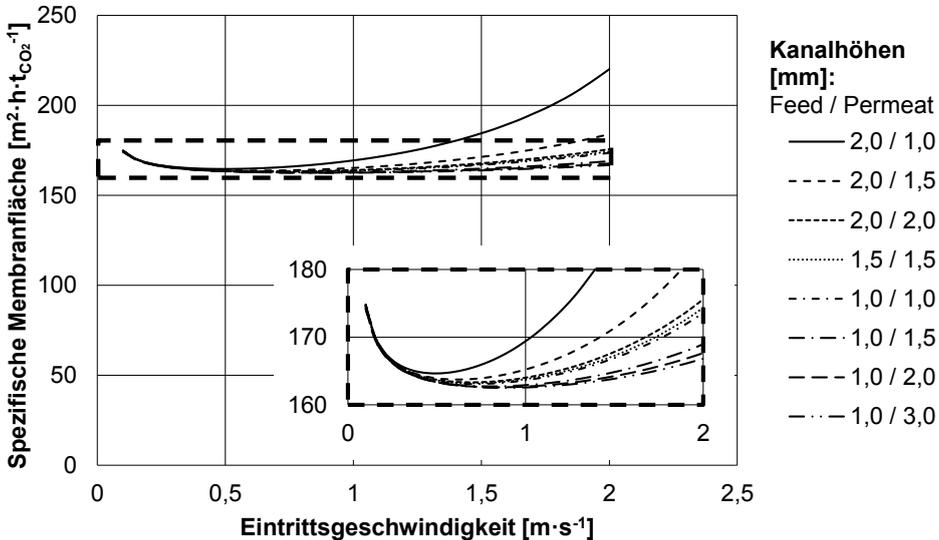


Abbildung 8-11: Spezifische Membranfläche je Tonne permeiertes CO<sub>2</sub> in der zweiten Trennstufe bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kombinationen von Kanalhöhen im Feed und Permeat

Die Abhängigkeit der spezifischen Membranfläche von der Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kombinationen von Kanalhöhen ist für die zweite Trennstufe in Abbildung 8-11 dargestellt. Analog zur ersten Trennstufe verringert sich die spezifische Membranfläche, je größer das Verhältnis von Permeat- und Feedkanal ist. Die Minima liegen bei Eintrittsgeschwindigkeiten von  $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für Kanalhöhen von 2 mm und 1 mm im Feed beziehungsweise Permeat und  $0,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  für Kanalhöhen von 1 mm und 3 mm im Feed beziehungsweise Permeat. Für jede bei einer Kombination aus Kanalhöhen optimale Eintrittsgeschwindigkeit liegen die spezifischen Membranflächen zwischen  $162,5 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{tCO}_2^{-1}$  und  $164,6 \text{ m}^2\cdot\text{h}\cdot\text{tCO}_2^{-1}$ .

**Optimale Eintrittsgeschwindigkeit der Trennstufen bei Kanalhöhen des Referenzfalls**

Die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten bei in den  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozess integrierten Membranmodulen können für die Kanalhöhen des Referenzfalls mit Hilfe der Abbildung 8-12 gefunden werden.

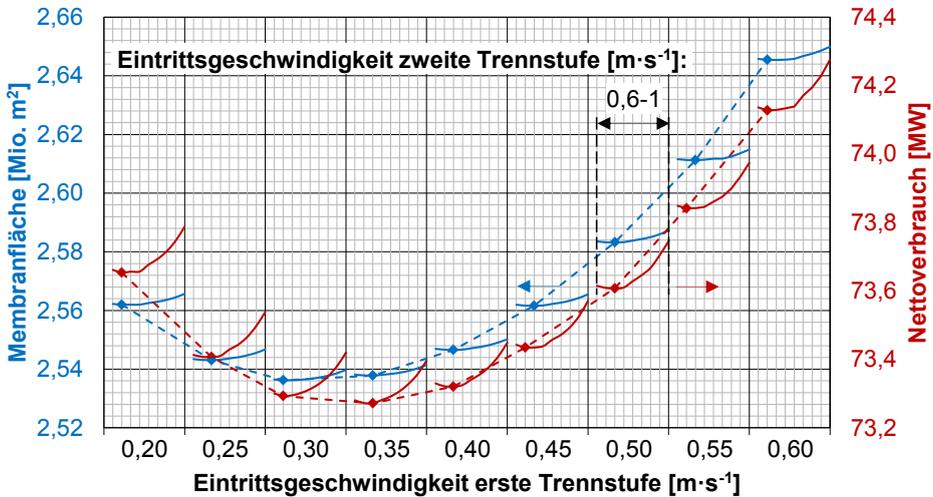


Abbildung 8-12: Gesamte Membranfläche und Nettoverbrauch des  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeiten der ersten und zweiten Trennstufe für Kanalhöhen im Feed von 2 mm und im Permeat von 1,5 mm (Referenzfall); Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe von  $0,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bis  $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  eingestellt und Eintrittsgeschwindigkeit in der zweiten Trennstufe von  $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bis  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  variiert; gestrichelte Linien verbinden minimale Membranfläche beziehungsweise minimalen Nettoverbrauch für jede Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe

Die optimalen Eintrittsgeschwindigkeiten der isoliert betrachteten Module beider Trennstufen dienen als Referenz für die Variation der Geschwindigkeiten im Abtrennprozess. Diese liegen bei  $0,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der ersten Trennstufe und  $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der zweiten Trennstufe. Daher werden die Eintrittsgeschwindigkeiten in der ersten Trennstufe zwischen  $0,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  sowie in der zweiten Trennstufe zwischen  $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  variiert. Hier ändert sich der Nettoverbrauch in gleicher Weise wie die Membranfläche. Diese wiederum variiert mit dem Abtrenngrad der ersten Trennstufe. Je mehr in der ersten Trennstufe abgetrennt

werden muss, um die Kombination aus 70 % Abtrenngrad und 95,5 mol-% CO<sub>2</sub>-Reinheit zu erreichen, desto größer ist dort die Membranfläche und desto größer ist gleichzeitig der Volumenstrom, der zwischen erster und zweiter Trennstufe komprimiert werden muss. Die Variation dieser Kompressionsleistung ist für den Verlauf des Nettoverbrauchs verantwortlich. Es ergibt sich für diese Analyse eine minimale Membranfläche von 2,53 Mio. m<sup>2</sup> bei Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,3 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe und 0,65 m·s<sup>-1</sup> in der zweiten Trennstufe. Der Nettoverbrauch des CO<sub>2</sub>-Abtrennprozesses wird für Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,35 m·s<sup>-1</sup> in der ersten Trennstufe und 0,7 m·s<sup>-1</sup> in der zweiten Trennstufe auf 73,3 MW minimiert.

### Kompartimente in der ersten Trennstufe des optimierten Falls

Wird die Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe des hinsichtlich der Kanalhöhe optimierten Falls für verschiedene Reihenschaltungen variiert, ergeben sich spezifische Membranflächen gemäß Abbildung 8-13. Während es für den Referenzfall Schnittpunkte der Graphen für ein, zwei und drei Kompartiment gibt, sodass in verschiedenen Bereichen der Eintrittsgeschwindigkeit eine andere Anzahl an Kompartimenten optimal ist, verlaufen die Graphen bei optimierter Kanalhöhe parallel zueinander ohne sich zu schneiden. Dabei vergrößert sich die spezifische Membranfläche je mehr Kompartimente in Reihe geschaltet sind. Dies bedeutet, dass durch die optimierten Verhältnisse der Kanalhöhen der Druckverlust im Permeatkanal bereits so weit reduziert ist, dass eine Unterteilung in Kompartiment für keine Eintrittsgeschwindigkeit einen Vorteil bringt.

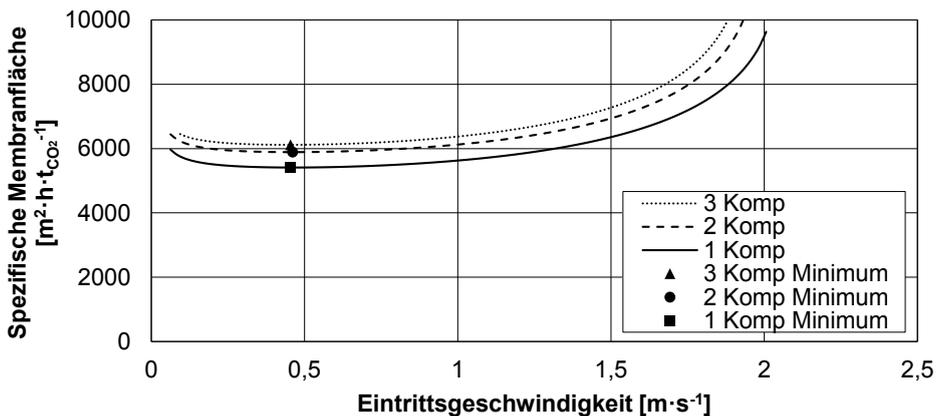


Abbildung 8-13: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei und drei Kompartimente (Komp) in der ersten Trennstufe des hinsichtlich der Kanalhöhe optimierten Falls

### Partieller Gleichstrombetrieb in der optimierten ersten Trennstufe

In Abbildung 8-14 ist dargestellt, wie groß die benötigte Membranfläche in der hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten ersten Trennstufe zum Erreichen des Abtrenngrades von 78,2 % für verschiedene Unterteilungen der Membranmodule in zwei Kompartimente ist. Das zweite Kompartiment wird in jedem Fall im Gegenstrom betrieben. Wird das erste Kompartimente ebenfalls im Gegenstrom betrieben, vergrößert sich zunächst

die benötigte Membranfläche für einen steigenden Anteil des ersten Kompartiments an der Gesamtlänge des Membranmoduls. Bildet das erste Kompartiment mehr als 60 % des gesamten Membranmoduls, sinkt die benötigte Membranfläche wieder. Für einen verschwindend geringen Anteil des zweiten Kompartiments ist das Abtrennverhalten jenem Verhalten des Moduls mit einem Kompartiment gleichgestellt. Im gesamten Bereich liegt die Membranfläche für zwei im Gegenstrom betriebene Kompartimente über der benötigten Membranfläche für ein Modul mit nur einem im Gegenstrom betriebenen Kompartiment. Wenn das erste Kompartiment dagegen im Gleichstrom betrieben wird, steigt die benötigte Membranfläche kontinuierlich an, je größer der Anteil des im Gleichstrom betriebenen Kompartiments ist.

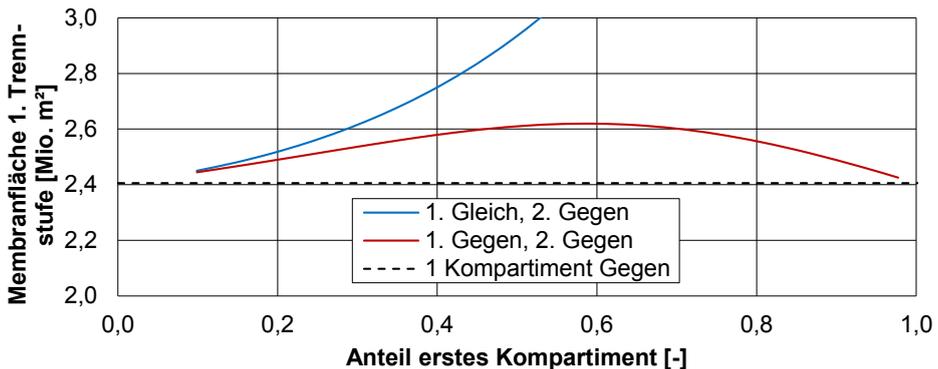


Abbildung 8-14: Benötigte Membranfläche der ersten Trennstufe bei variabler Unterteilung des Membranmoduls in zwei Kompartimente für den hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall; erstes Kompartiment wird im Gleichstrom oder Gegenstrom betrieben; zweites Kompartiment wird im Gegenstrom betrieben

### Schwankungen in der Membranfläche bei Variation der Modulhöhe

Im Folgenden werden die Schwankungen in der benötigten Membranfläche bei höheren Modulen aus Abbildung 5-23 erklärt. Für eine bestimmte Modulhöhe beziehungsweise -breite ergibt sich je nach Eintrittsgeschwindigkeit der Volumenstrom je Modul. Das Verhältnis von dem gesamten, aufzubereitenden Volumenstrom und dem Volumenstrom je Modul ergibt die exakte Anzahl an benötigten Membranmodulen. Da dies in der Regel eine reelle Zahl ist, wird die Anzahl der Module auf einen ganzzahligen Wert ab- oder aufgerundet. Wird aufgerundet, liegt die Membranfläche bei fester Modullänge über der benötigten Membranfläche, sodass die Modullänge zum Erreichen eines bestimmten Abtrenngrades gekürzt werden kann. Gleichzeitig erhöht sich die durchströmte Querschnittsfläche im Feed minimal, sodass die Strömungsgeschwindigkeit und somit der Druckverlust im Feedkanal gesenkt werden. Die Kopplung beider Effekte resultiert in einer geminderten benötigten Membranfläche, wenn die Anzahl der Module aufgerundet wird. Analog erhöht sich die benötigte Membranfläche leicht, wenn die Anzahl der Module abgerundet wird. Abbildung 8-15 zeigt in Abhängigkeit der Modulbreite, ob auf- oder abgerundet wird. Hierbei wird das Verhältnis von gerundeter und nicht gerundeter Anzahl an Modulen als Indikator verwendet. Wird aufgerundet, ist das Verhältnis größer als Eins. Weiterhin ist die Membranfläche als Funktion der Modulbreite

aufgetragen. Je stärker die gerundete Anzahl an Modulen nach oben von dem berechneten, nicht gerundeten Wert abweicht, desto kleiner ist die Membranfläche. Damit sind die Schwankungen in der benötigten Membranfläche für Modulbreiten beziehungsweise -höhen größer als 1,5 m zu erklären. Diese bewegen sich in einem Fenster von ca. 10.000 m<sup>2</sup>. Dies entspricht ungefähr der Membranfläche eines Moduls bei diesen Modulbreiten. Bei kleinen Modulbreiten geht die Rundung der Anzahl an Membranmodulen nicht so stark ins Gewicht, da ein Modul kleiner ist und bei einer großen Anzahl an Membranmodulen von mehr als 500 eine Abweichung um ein Modul vernachlässigbar ist.

Wird die Modulbreite von der Modulhöhe entkoppelt und nur die Modulbreite – nicht aber die Modulhöhe – variiert, ist die Membranfläche nahezu konstant für alle Modulbreiten. Die leichten Schwankungen ergeben sich wieder aus der Rundung der Anzahl der Membranmodule.

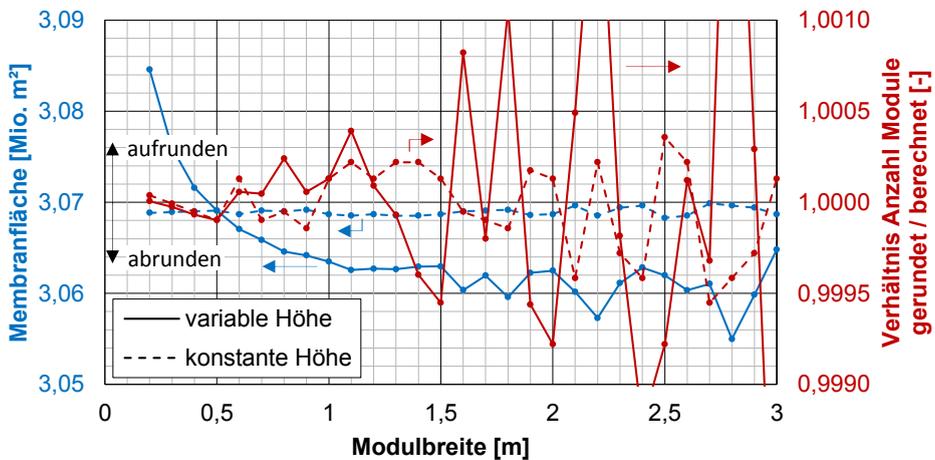


Abbildung 8-15: Auswirkung der Rundung der Anzahl an Membranmodulen auf die benötigte Membranfläche bei konstantem Abtrenngrad und Variation der Modulbreite für eine variable Modulhöhe – also Modulhöhe gleich Modulbreite – (durchgezogene Linien) und eine konstante Modulhöhe (gestrichelte Linien)

### Membranfläche in Abhängigkeit der Modulhöhe für die optimierte erste Trennstufe

Wird die Modulhöhe für das hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierte Membranmodul der ersten Trennstufe variiert, ergibt sich das in Abbildung 8-16 dargestellte Verhalten der Membranfläche. Analog zum Verhalten im Referenzfall sinkt die Membranfläche bei steigender Modulhöhe. Allerdings sind die Unterschiede zwischen minimaler und maximaler Membranfläche mit ca. 300 m<sup>2</sup> verschwindend gering. Hier wirkt sich der Effekt, dass sich die Anzahl der Feedkanäle und die Anzahl der Membrantaschen bei Variation der Modulhöhe unterschiedlich vervielfachen, nicht so stark aus, da der Volumenstrom je Kanal geringer ist. Doch auch hier verringern sich die Modullänge und damit die Membranfläche mit steigender Membranfläche je Meter bezogen auf den Feedstrom.

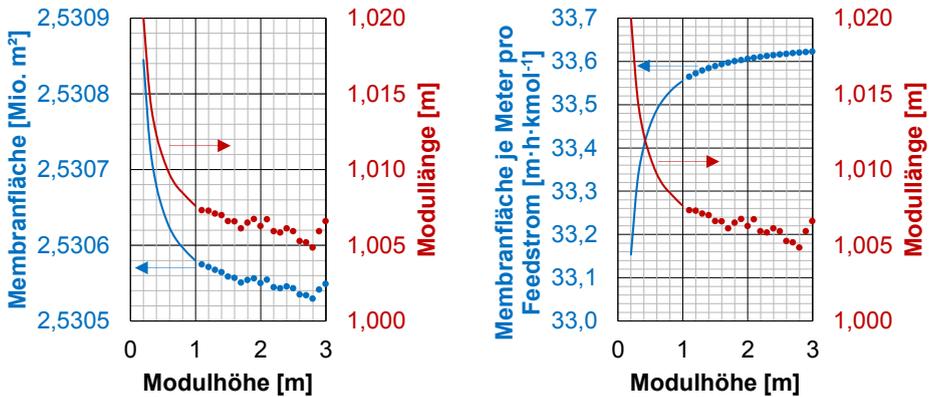


Abbildung 8-16: Auswirkungen der Variation der Modulhöhe bei konstantem Abtrenngrad der hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten ersten Trennstufe auf die gesamte Membranfläche und die Modullänge (links) und Zusammenhang zwischen der Membranfläche je Meter bezogen auf den Feedstrom je Modul und der Modullänge (rechts)

### Packungsdichte und Modulgröße der zweiten Trennstufe

Die Verläufe der Packungsdichten der Membranmodule der zweiten Trennstufe sind in Abbildung 8-17 (links) für den Referenzfall und den optimierten Fall dargestellt. Die Packungsdichten der Membranmodule der zweiten Trennstufe sind für den optimierten Fall größer als für den Referenzfall. Hier wird der Vorteil durch die niedrigeren Kanalhöhen im optimierten Fall deutlich, da die Modulängen im Referenzfall und im optimierten Fall nicht weit auseinander liegen. Da die Anzahl der Module im optimierten Fall aufgrund der geringeren Volumenströme je Modul größer ist, sind die Durchmesser der Zu- und Ablaufrohre kleiner, sodass der Anteil der inaktiven Membranfläche geringer wird und der verbaute Raum kleiner ist. Der Verlauf der Graphen der Packungsdichte ist analog zu den Graphen der ersten Trennstufe. Allerdings sind die absoluten Werte der Packungsdichte im Gegensatz zur ersten Trennstufe niedriger, da die Module kürzer sind, gleichzeitig jedoch hohe Volumenströme im Permeat aufweisen, sodass die Permeatrohre dementsprechend groß sind. Sie liegen maximal bei  $415 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  für eine Modulhöhe von 1,1 m im Referenzfall und bei  $450 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$  für eine Modulhöhe von 0,8 m im optimierten Fall. Die leichten Schwankungen in der Packungsdichte ergeben sich aus der Rundung der Anzahl an Membranmodulen bei der Aufteilung des Feedstroms auf die Module.

Aufgrund des geringeren Stoffmengenstroms in der zweiten Trennstufe werden dort weniger Module benötigt als in der ersten Trennstufe. So liegt die Anzahl der Module bei einer Modulhöhe von 0,2 m bei 1800 und 2460 im Referenzfall beziehungsweise optimierten Fall, wie in Abbildung 8-17 (rechts) dargestellt ist. Bei einer Modulhöhe von 2 m sind nur noch 18 oder 25 Module für den Referenzfall beziehungsweise den optimierten Fall parallel zu schalten. Dabei steigt die Membranfläche je Modul im Referenzfall von  $29 \text{ m}^2$  für eine Modulhöhe von 0,2 m auf  $3000 \text{ m}^2$  für eine Modulhöhe von 2 m und im optimierten Fall von  $20 \text{ m}^2$  für eine Modulhöhe von 0,2 m auf  $1930 \text{ m}^2$  für eine Modulhöhe von 2 m.

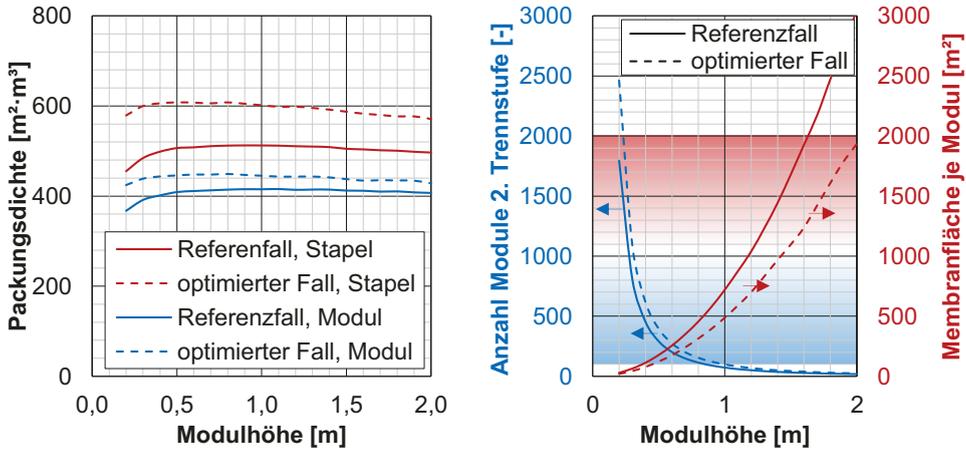


Abbildung 8-17: Packungsdichte (links) sowie Anzahl der Module und Membranfläche je Modul in der zweiten Trennstufe (rechts) bei Variation der Modulhöhe beziehungsweise -breite in der zweiten Trennstufe für den Referenzfall und den bezüglich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Fall

### Durchmesser des Zulaufrohres und Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung

Die Abhängigkeiten des Durchmessers des Zulaufrohres und des Öffnungswinkels der Querschnittserweiterung von der Modulhöhe ist für Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  in Abbildung 8-18 dargestellt. Je größer ein einzelnes Membranmodul ist, desto größer ist der Feedstrom je Modul. Damit steigt der Durchmesser des Zulaufrohres. Für höhere zulässige Strömungsgeschwindigkeiten wird das Zulaufrohr kleiner dimensioniert. In der zweiten Trennstufe ist der Volumenstrom je Modul größer, da die Eintrittsgeschwindigkeit des Feedstroms in den Membranstapel bei  $1,1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  statt bei  $0,5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  liegt. Dementsprechend sind die Durchmesser des Zulaufrohres in der zweiten Trennstufe größer.

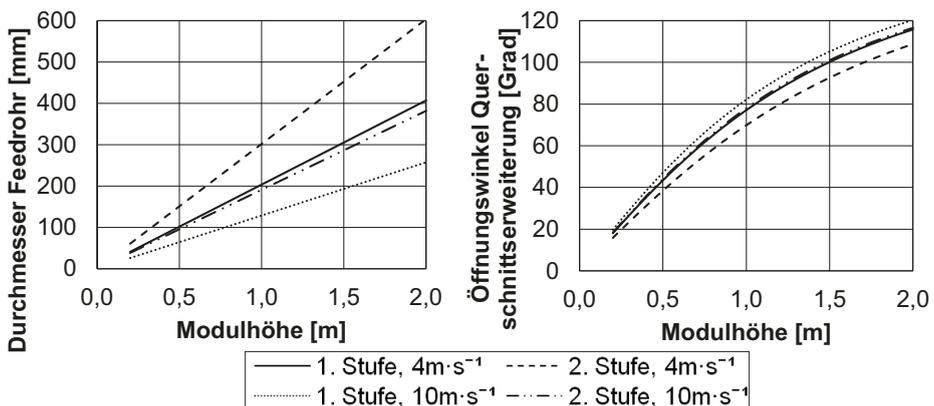


Abbildung 8-18: Durchmesser des Zulaufrohres (links) sowie Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung (rechts) für Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe in beiden Trennstufen

### Anteil des Membranmoduls der zweiten Trennstufe im reinen Gegenstrombetrieb

In Abbildung 8-19 ist für die zweite Trennstufe der Anteil des Membranmoduls, welcher im reinen Gegenstrom betrieben wird, für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in Abhängigkeit der Modulhöhe dargestellt. Auch hier gilt, dass der Anteil gesteigert wird, wenn der Durchmesser der Permeatrohre durch eine erhöhte Strömungsgeschwindigkeit oder durch die Verteilung des Permeatstroms auf mehrere Permeatrohre verkleinert wird.

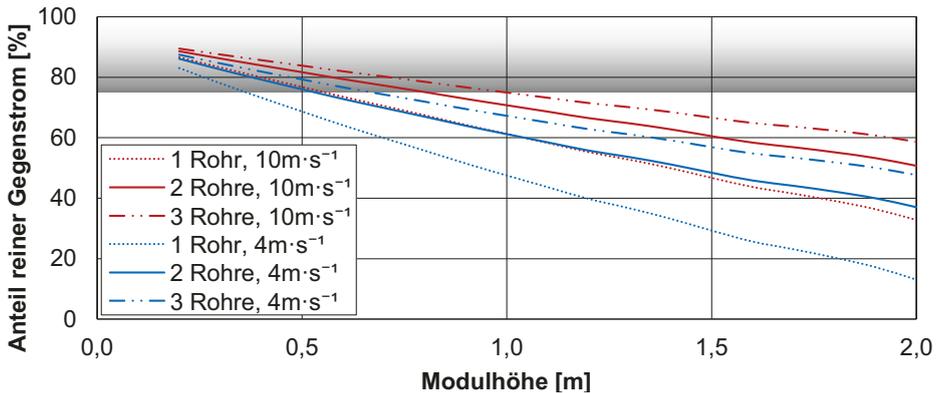


Abbildung 8-19: Anteil der Länge, die im reinen Gegenstrom betrieben werden kann an der Gesamtlänge der Membrantasche für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  sowie  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe in der zweiten Trennstufe

### Druckverlust in den Anschlussrohren

Der Druckverlust je Meter Rohrlänge ist für ein, zwei und drei Permeatrohre und für Strömungsgeschwindigkeiten innerhalb der Permeatrohre von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in Abbildung 8-20 dargestellt. Für verschiedene Modulhöhen ergeben sich unterschiedliche Volumenströme je Modul, sodass der Durchmesser der Permeatrohre angepasst wird. Je größer der Volumenstrom im Permeat ist, desto größer wird für eine bestimmte Strömungsgeschwindigkeit der Rohrdurchmesser. Mit steigendem Rohrdurchmesser sinkt der Druckverlust je Meter. Der Druckverlust wird gemäß Gl. 3-31 bestimmt, wobei die Rohrreibungszahl je nach Reynoldszahl mit einer der Formeln der Tabelle 8-4 ermittelt wird.

Der Druckverlust in den Permeatrohren liegt in der ersten Trennstufe im extremen Fall, in dem 3 Permeatrohre parallel den Permeatstrom abführen und mit einer Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  durchströmt werden, bei ca.  $25 \text{ Pa}\cdot\text{m}^{-1}$ . Wird beispielsweise angenommen, dass jedes Permeatrohr 10 m lang ist, bevor es in einem Sammelrohr endet, ergibt sich ein Druckverlust von ca. 2,5 mbar. In der zweiten Trennstufe beträgt der Druckverlust für die gleiche Konfiguration – 3 Permeatrohre und eine Strömungsgeschwindigkeit von  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  – ca.  $68 \text{ Pa}\cdot\text{m}^{-1}$ . Höhere Module trennen einen größeren Permeatstrom je Modul ab, sodass die Durchmesser der Permeatrohre steigen und somit der Druckverlust abnimmt. Je mehr Rohre parallel eingesetzt werden und je größer die zulässige Strömungsgeschwindigkeit ist, desto größer ist der Druckverlust in den einzelnen Permeatrohren.

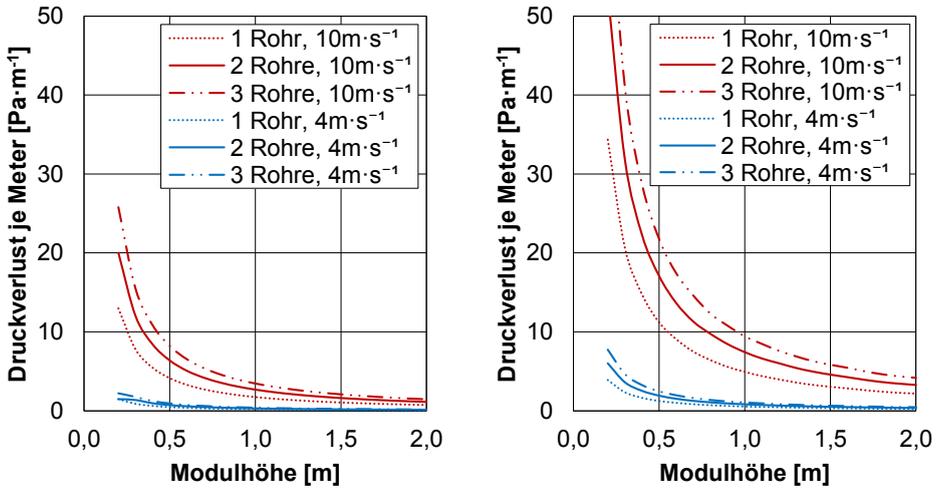


Abbildung 8-20: Druckverlust je Meter Rohrlänge für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der ersten Trennstufe (links) und in der zweiten Trennstufe (rechts) in Abhängigkeit der Modulhöhe



## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Methodisches Vorgehen zur Konzeption und Auswahl des Membranmoduls .....	4
Abbildung 2-1: Schematische Darstellung einer membranbasierten Gastrennung in Anlehnung an [18, S. 1].....	5
Abbildung 2-2: Schematische Darstellung des Unterschieds zwischen CO <sub>2</sub> -Vermeidung und CO <sub>2</sub> -Abtrennung in Anlehnung an [20] .....	8
Abbildung 2-3: Klassifizierung von Membranen; rot umrandet sind die Klassifizierungselemente des in der vorliegenden Arbeit zugrunde gelegten Membranmaterials; in Anlehnung an [18, S. 20] .....	10
Abbildung 2-4: Robeson-Plot für die CO <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> -Trennung für gängige Polymere Membranen in Anlehnung an [22]; rote Kreise: Literaturoberwertungen des klassischen Robeson-Plots [22], schwarze Dreiecke: Polyactive <sup>®</sup> mit verschiedenen Massenanteilen der PEO- und PBT-Blöcke sowie verschiedenen Blend-Materialien [23; 24; 25], grünes Viereck: Polaris <sup>™</sup> mit einer Permeanz von 1000 GPU und einer Membrandicke von 1000 Å [26; 27].....	11
Abbildung 2-5: Schematische Darstellung der chemischen Struktur von Polyactive <sup>®</sup> ; PEO: Polyethylenoxid; PBT: Polybutylenterephthalat [23].....	12
Abbildung 2-6: Allgemeine Strömungsführungen und Betriebsweisen bei Membranmodulen; die durch die schraffierten Pfeile gekennzeichneten Ablaufkanäle werden nur zeitweise geöffnet; in Anlehnung an [18, S. 152].....	13
Abbildung 2-7: Übersicht über Modulbauformen in Anlehnung an [18, S. 156].....	15
Abbildung 2-8: Schlauchmembranen: a) Hohlfasermodul, b) Kapillarmodul, c) Rohrmodul; Flachmembranen: d) Spiralwickelmodul, e) Plattenmodul, f) Taschenmodul [34; 35; 36; 37; 38; 39] .....	15
Abbildung 2-9: Geometriegrößen von nicht-gewebten (oben) und gewebten (unten) Spacern; in Anlehnung an [48] .....	19
Abbildung 2-10: Profile der Stoffmengenanteile und membranorthogonale, konvektive und diffusive Stoffströme der Komponenten <i>i</i> und <i>j</i> in der laminaren Konzentrationsgrenzschicht der Feedseite; in Anlehnung an [18, S. 119].....	21
Abbildung 2-11: Grundverschaltungen von Membranmodulen in Anlehnung an [18, S. 206].....	23
Abbildung 2-12: Schematische Darstellung eines in Kompartimente aufgeteilten Membranmoduls bei beispielhaftem Gegenstrombetrieb; in Anlehnung an [34].....	24
Abbildung 2-13: Membranbasierter CO <sub>2</sub> -Abtrennprozess aus Kraftwerksrauchgas in Anlehnung an [15].....	31

Abbildung 3-1:	Diskretisierung des Membranmoduls in Zellen in Aspen Custom Modeler®; schwarze Pfeile zeigen Stoffströme am Übergang zwischen zwei Zellen; rote Pfeile zeigen Stoffströme, die in die Stoffmengenbilanz der Zelle $k$ auf der Feed- beziehungsweise Permeatseite eingehen; in Anlehnung an [74].....	38
Abbildung 3-2:	Methodik der benutzerdefinierten Funktion zur Modellierung der Permeation in ANSYS® FLUENT® .....	39
Abbildung 3-3:	Grundformen von dreidimensionalen Zellen bei der Vernetzung des Strömungsgebietes: a) Tetraeder, b) Pyramide, c) Prisma, d) Hexaeder .....	46
Abbildung 3-4:	Vernetzungsmethodik in ANSYS® ICEM CFD™ nach dem Top-Down-Prinzip in Anlehnung an [84; 85].....	48
Abbildung 3-5:	Geometrie einer Querschnittserweiterung .....	54
Abbildung 3-6:	Strömungszustände in Diffusoren in Anlehnung an [96]: a) anliegende, stationäre Strömung; b) instationäre Strömung mit örtlich und zeitlich veränderlicher Ablösung; c) voll ausgebildetes Ablösegebiet mit Hauptströmung an einer Wand; d) Freistrahlsströmung mit beidseitigem Ablösegebiet .....	55
Abbildung 3-7:	Abhängigkeit des Strömungszustandes von der Geometrie der Querschnittserweiterung in Anlehnung an [96].....	56
Abbildung 3-8:	Kalkulatorische Zinssätze (WACC) verschiedener Studien; Daten aus [16; 101; 102; 103; 104; 105; 106; 107].....	59
Abbildung 3-9:	Methodik zur Bestimmung der Investitionssumme der Bauteile des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses in Anlehnung an [108] .....	60
Abbildung 3-10:	Entwicklung des CO <sub>2</sub> -Zertifikatpreises von Oktober 2012 bis Februar 2015 (links; Daten aus [121]); Prognosen zur zeitlichen Entwicklung des CO <sub>2</sub> -Zertifikatpreises verschiedener Studien (rechts; Daten aus [11, S. 98]), dargestellt sind jeweils Minimum, Mittelwert und Maximum der Studien für die Jahre 2020, 2030 und 2050 sowie eine eigene Prognose mit einer jährlichen Steigerungsrate von $1 \text{ €} \cdot t_{\text{CO}_2}^{-1} \text{ a}^{-1}$ beginnend bei einem Zertifikatpreis von Anfang 2015 von $7 \text{ €} \cdot t_{\text{CO}_2}^{-1}$ (gestrichelte Linie).....	65
Abbildung 4-1:	Aufbau des Prototyp-Moduls für den Gegenstrombetrieb in Standardausführung.....	70
Abbildung 4-2:	Vereinfachte Darstellung zur Visualisierung der Abmessungen des Prototyp-Moduls in Standardausführung; oben: Seitenansicht; unten: Draufsicht.....	71

Abbildung 4-3:	Druckverlustcharakteristik der Spacer-gefüllten Kanäle für eine Kanalhöhe von 1,5 mm; ausgewertet für verschiedene Drücke im Kanal; die Markierungen zeigen die Auswertung der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik eines Spacer nach [81]; Linien und Formeln zeigen das zugehörige Regressionspolynom zweiten Grades, aus denen die Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers gewonnen werden; grau dargestellt ist die Auswertung der Druckverlustcharakteristik gemäß [34] .....	72
Abbildung 4-4:	In FLUENT® simulierter Druckverlust in einem 1,984 m langen Spacergefüllten Kanal; Kanalhöhe: 1,5 mm; Druckangabe entspricht Überdruck über dem Betriebsdruck von $4 \cdot 10^5$ Pa; Eintrittsgeschwindigkeit: $0,84 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .....	74
Abbildung 4-5:	Geschwindigkeitsprofile einer turbulenten Rohrströmung an verschiedenen Positionen entlang der Rohrachse mit einer beispielhaften durchschnittlichen Geschwindigkeit von $2,3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ (links) und Vorgabe eines Geschwindigkeitsprofils am Eintritt des Zulaufrohres durch eine benutzerdefinierte Funktion (UDF) und ausgebildete Rohrströmung im Zulaufrohr (rechts).....	75
Abbildung 4-6:	Druckverlauf auf der Feedseite des Membranmoduls inklusive Zulauf- und Ablaufbereich bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in den Membranstapel von $0,4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ; Überdruck bezogen auf einem Retentatdruck von ca. 4 bar (400.000 Pa).....	76
Abbildung 4-7:	Strömungsverlauf des Feedstroms im Membranmodul (oben) und Verteilung der Geschwindigkeit in z-Richtung im Querschnitt A-A und B-B (unten).....	78
Abbildung 4-8:	Abtrenngrad bei inhomogener Verteilung des Massenstroms auf die Feedkanäle des Membranmoduls; gesamt: Abtrenngrad bezogen auf den gesamten Feedstrom; Teil: Abtrenngrad bezogen auf den Feedstrom in der Modulhälfte.....	79
Abbildung 4-9:	Qualitative Strömungsverteilung in der Querschnittserweiterung mit nachgeschaltetem freien Kanal (oben, in Anlehnung [84]) und mit nachgeschaltetem Membranstapel und Spacer-gefüllten Feedkanälen (unten) .....	80
Abbildung 4-10:	Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom für den Fall Spacer-gefüllter Feedkanäle und für den Fall freier Feedkanäle .....	81
Abbildung 4-11:	Qualitative Strömungsverteilung in der Querschnittserweiterung sowie in den Feedkanälen 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels für verschiedene Kombinationen aus Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit und Feeddruck a) Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit: $0,4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , Feeddruck: 1 bar; b) Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit: $0,4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , Feeddruck: 4 bar; c) Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit: $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , Feeddruck: 4 bar.....	82
Abbildung 4-12:	Anteil des Massenstroms eines Feedkanals am Gesamtmassenstrom für verschiedene Kombinationen aus Feeddruck und Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit.....	83

Abbildung 4-13: Abmessungen der drei Leitblechkonfigurationen: a) drei gerade Leitbleche; b) drei Leitbleche, von denen die äußeren beiden gekrümmt sind; c) zwei gekrümmte Leitbleche; alle Angaben in mm.....84

Abbildung 4-14: Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung und Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung der Anströmung des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen.....86

Abbildung 4-15: Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung innerhalb von drei Feedkanälen der Modulmitte – nummeriert von oben nach unten innerhalb des Moduls – 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen.....87

Abbildung 4-16: Bypass an der Verjüngung der Membrantaschen und Strömungsgeschwindigkeiten in den Feedkanälen und dem Bypass .....89

Abbildung 4-17: Aufteilung des Gesamtmassenstroms auf die Strömung durch die Feedkanäle und durch den Bypass für verschiedene Leitblech-Konfigurationen.....89

Abbildung 4-18: Verlauf des  $\text{CO}_2$ -Massenanteils im Feed bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit von  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .....90

Abbildung 4-19: Vergleich der Abtrenngrade aus den Strömungssimulationen in ANSYS® FLUENT® und der Simulation des Membranmoduls mit den gleichen Randbedingungen in Aspen Plus® sowie die Moduleffizienz; Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit:  $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Feeddruck: 4 bar; Permeatdruck: 0,1 bar.....92

Abbildung 5-1: Freiheitsgrade und Randbedingungen bei der Wahl der Modulgeometrie .....95

Abbildung 5-2: Abtrenngrad der zweiten Trennstufe,  $\text{CO}_2$ -Reinheit im  $\text{CO}_2$ -Produktstrom und Gesamtmembranfläche bei Variation des Abtrenngrades der ersten Trennstufe für einen Prozessabtrenngrad von 70 %; gestrichelte Linie kennzeichnet die erforderliche  $\text{CO}_2$ -Reinheit von 95,5 mol-% .....99

Abbildung 5-3: Membranfläche (links) und  $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteile ausgewählter Prozessströme (rechts) in Abhängigkeit des Abtrenngrades in der ersten Trennstufe für einen Prozessabtrenngrad von 70 %.....100

Abbildung 5-4: Vergleich von Membranfläche und Nettoverbrauch des  $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses mit und ohne Druckverlust sowie mit und ohne Modellierung der Konzentrationspolarisation; Konzentrationspolarisation modelliert mit Sherwood-Korrelationen nach Melin [18, S. 147] und Da Costa [50].....103

Abbildung 5-5:	Zusammensetzung der Stromgestehungskosten aus Investitionskosten, Betriebs- und Instandhaltungskosten, Brennstoffkosten und Zertifikatkosten sowie Aufschlüsselung der Investitionskosten auf die Anlagen des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses und das Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen; Angaben in ct·kWh <sup>-1</sup> .....	105
Abbildung 5-6:	Veränderung der Stromgestehungskosten (SGK) bei Variation wichtiger, angenommener Parameter um ±20 % ausgehend von SGK im Referenzfall von 7,3 ct·kWh <sup>-1</sup> sowie Veränderung der SGK durch eine Änderung des CO <sub>2</sub> -Zertifikatpreises im Jahr der Inbetriebnahme auf 70 €·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup> .....	106
Abbildung 5-7:	Prozentuale Veränderung der CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten bei Variation von Prozessparametern um ±20 % ausgehend von CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten im Referenzfall von 68 €·t <sub>CO<sub>2</sub></sub> <sup>-1</sup> .....	107
Abbildung 5-8:	CO <sub>2</sub> -Permeationsstrom am Modulende der ersten Trennstufe und zugehörige Modullänge bei variablem Abtrenngrad für Eintrittsgeschwindigkeiten von 0,5 m·s <sup>-1</sup> , 1 m·s <sup>-1</sup> , 1,5 m·s <sup>-1</sup> , 2 m·s <sup>-1</sup> , 2,5 m·s <sup>-1</sup> und 3 m·s <sup>-1</sup> .....	108
Abbildung 5-9:	Querschnittsfläche der Feedkanäle und Membranfläche je Meter Modullänge bei einer Gesamthöhe und -breite des Membranmoduls von 2 m für verschiedene Kanalhöhen im Feed und Permeat.....	110
Abbildung 5-10:	Spezifische Membranfläche je Tonne permeiertes CO <sub>2</sub> in der ersten Trennstufe bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kombinationen von Kanalhöhen im Feed und Permeat.....	111
Abbildung 5-11:	Gesamte Membranfläche und elektrischer Nettoverbrauch des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeiten der ersten und zweiten Trennstufe für Kanalhöhen im Feed von 1 mm und im Permeat von 2 mm; Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe von 0,3 m·s <sup>-1</sup> bis 0,7 m·s <sup>-1</sup> eingestellt und Eintrittsgeschwindigkeit in der zweiten Trennstufe von 0,8 m·s <sup>-1</sup> bis 1,2 m·s <sup>-1</sup> variiert; gestrichelte Linien verbinden minimale Membranfläche beziehungsweise minimalen Nettoverbrauch für jede Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe.....	114
Abbildung 5-12:	Reduzierte CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten durch optimierte Kanalhöhen und Eintrittsgeschwindigkeiten; Kanalhöhe in mm, Eintrittsgeschwindigkeit in m·s <sup>-1</sup> .....	116
Abbildung 5-13:	Profil des Permeatdruckes und des CO <sub>2</sub> -Stoffmengenanteils im Permeat für ein und drei Kompartimente entlang der Lauflänge des Membranmoduls sowie der CO <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil der gemischten Permeatströme der drei Kompartimente.....	117
Abbildung 5-14:	Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei und drei Kompartimente (Komp) in der ersten Trennstufe des Referenzfalls; Markierungen geben das jeweilige Minimum der spezifischen Membranfläche für ein, zwei und drei Kompartimente an; fette Linien markieren die jeweils minimale spezifische Membranfläche aller möglicher Reihenschaltungen für eine Eintrittsgeschwindigkeit.....	118

Abbildung 5-15: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei, drei und vier Kompartimente (Komp) in der zweiten Trennstufe des Referenzfalls (links) und des hinsichtlich der Kanalhöhe optimierten Falls (rechts).....	119
Abbildung 5-16: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für unterschiedliche Anteile des ersten Kompartiments (Komp) an der Gesamtlänge des Membranmoduls in der ersten Trennstufe des Referenzfalls.....	120
Abbildung 5-17: CO <sub>2</sub> -Stoffmengenanteil (links) und Druck (rechts) auf der Feed- und Permeatseite eines Membranmoduls bei Gleich- und Gegenstrombetrieb für den Referenzfall der ersten Trennstufe bei einer Modullänge von 5 m.....	122
Abbildung 5-18: Abtrenngrad im Gegenstrom- und Gleichstrombetrieb und deren Differenz für Modullängen zwischen 0,1 m und 5 m und für einen Feeddruck von 1 bar beziehungsweise 4 bar; sonstige Parameter entsprechen denen der ersten Trennstufe des Referenzfalls .....	123
Abbildung 5-19: Wasserdampfstrom im Permeat (links) und Wasserdampf-Permeationsstrom (rechts) für ein Modul bei einer Modullänge von 0,4 m, einem Feeddruck von 1 bar beziehungsweise 4 bar und Betrieb des Moduls im Gegenstrom beziehungsweise Gleichstrom, sonstige Parameter entsprechen denen der ersten Trennstufe des Referenzfalls .	124
Abbildung 5-20: Stoffmengenanteile von Wasserdampf (links) und CO <sub>2</sub> (rechts) im Permeat bei einer Modullänge von 0,4 m, einem Feeddruck von 1 bar beziehungsweise 4 bar und Betrieb des Moduls im Gegenstrom beziehungsweise Gleichstrom; sonstige Parameter entsprechen denen der ersten Trennstufe des Referenzfalls.....	125
Abbildung 5-21: Stoffmengenanteile von Wasserdampf (links) und CO <sub>2</sub> (rechts) im Permeat bei einer Modullänge von 0,4 m, einem Permeatdruck von 1 bar beziehungsweise 0,15 bar und Betrieb des Moduls im Gegenstrom beziehungsweise Gleichstrom, sonstige Parameter entsprechen denen der zweiten Trennstufe des Referenzfalls .....	126
Abbildung 5-22: Benötigte Membranfläche der zweiten Trennstufe bei variabler Unterteilung des Membranmoduls in zwei Kompartimente für den hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall; erstes Kompartiment wird im Gleichstrom oder Gegenstrom betrieben; zweites Kompartiment wird im Gegenstrom betrieben.....	127
Abbildung 5-23: Auswirkungen der Variation der Modulhöhe bei konstantem Abtrenngrad der ersten Trennstufe des Referenzfalls auf die gesamte Membranfläche und die Modullänge (links) und Zusammenhang zwischen der Membranfläche je Meter bezogen auf den Feedstrom je Modul und der Modullänge (rechts).....	129
Abbildung 5-24: Gesamte Membranfläche und Nettoverbrauch (links) sowie CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten (rechts) des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses bei Variation der Modulhöhe in der ersten Trennstufe für den Referenzfall und den bezüglich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Fall .....	130

Abbildung 5-25: Packungsdichte (links) sowie Anzahl der Module und Membranfläche je Modul in der ersten Trennstufe (rechts) bei Variation der Modulhöhe beziehungsweise -breite in der ersten Trennstufe für den Referenzfall und den bezüglich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Fall .....	131
Abbildung 5-26: Vereinfachte Darstellung einer Membrantasche mit zwei Permeatrohren mit Visualisierung der inaktiven Membranfläche sowie dem Bereich, in dem das Membranmodul im reinen Gegenstrom betrieben wird .....	133
Abbildung 5-27: Packungsdichte (links) und inaktive Membranfläche bei der Herstellung der Membrantaschen (rechts) der Membranmodule in der ersten und zweiten Trennstufe des optimierten Falls für verschiedene Modulhöhen und einer Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren von $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ und $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .....	134
Abbildung 5-28: Durchmesser der Permeatrohre in der ersten Trennstufe (links) und in der zweiten Trennstufe (rechts) für ein, zwei und drei Permeatrohre und zulässige Strömungsgeschwindigkeiten in den Anschlussrohren von $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ und $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ bei Variation der Modulhöhe .....	135
Abbildung 5-29: Anteil der Länge, die im reinen Gegenstrom betrieben werden kann, an der Gesamtlänge der Membrantasche für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten in den Permeatrohren von $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ sowie $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ bei Variation der Modulhöhe in der ersten Trennstufe .....	136
Abbildung 5-30: Optimale Eintrittsgeschwindigkeit und Höhen der Feed- und Permeatkanäle in der ersten Trennstufe für unterschiedliche Drücke auf der Feed- und Permeatseite sowie Druckverhältnisse der Varianten; Drücke in bar .....	139
Abbildung 5-31: Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei und drei Kompartimente (Komp) in der ersten Trennstufe; Kanalhöhen: 1 mm im Feed, 2 mm im Permeat; Markierungen geben das jeweilige Minimum der spezifischen Membranfläche für ein, zwei und drei Kompartimente an .....	141
Abbildung 5-32: Inaktive Membranfläche und Packungsdichte sowie der Anteil der Länge, die im reinen Gegenstrom betrieben werden kann, an der Gesamtlänge der Membrantasche für ein, zwei und drei Permeatrohre bei Variation der Modulhöhe in der ersten Trennstufe; Eintrittsgeschwindigkeit: $0,85 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Strömungsgeschwindigkeit in den Anschlussrohren: $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ; Drücke: 8 bar im Feed, 0,15 bar im Permeat; Schattierung markiert den Bereich, bei dem mehr als 75 % des Moduls im reinen Gegenstrom betrieben werden .....	142
Abbildung 5-33: Nettowirkungsgrad des RKW NRW ohne $\text{CO}_2$ -Abtrennung und $\text{CO}_2$ -Stoffmengenanteil des Rauchgases bei Teillast; Daten aus [64] .....	145
Abbildung 5-34: Zusammensetzung des Rauchgases bei Vollast sowie bei 40 %, 60 % und 80 % Teillast .....	146

Abbildung 5-35: Abtrenngrad und CO <sub>2</sub> -Reinheit bei Variation der Anzahl an Membranmodulen der ersten Trennstufe und Grenzen zur Einhaltung der CO <sub>2</sub> -Reinheit und der emittierten Menge CO <sub>2</sub> bei 40 % Teillast für 10, 20, 30, 40 und 50 Module in der zweiten Trennstufe .....	148
Abbildung 5-36: Hinsichtlich spezifischer variabler Betriebskosten optimierte Modulverschaltung der ersten und zweiten Trennstufe für Teillast-Betriebspunkte von 40 %, 60 % und 80 % sowie Volllast bei einer Modulhöhe von 1 m.....	149
Abbildung 6-1: Vergleich des Nettoverbrauchs, der CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten und der Membranfläche im Referenzfall, im optimierten Fall und im idealen Fall mit CO <sub>2</sub> -Permeanz von Polyactive® und Vergleich zwischen optimiertem und idealem Fall für eine doppelte CO <sub>2</sub> -Permeanz wie bei Polyactive® .....	161
Abbildung 8-1: Schematische Prozessfließbilder der drei Hauptabtrennrouten in Anlehnung an [127, S. 67-73].....	171
Abbildung 8-2: Prozessfließbild der aminbasierten CO <sub>2</sub> -Wäsche in Niederaussem [143].....	175
Abbildung 8-3: Vergleich zwischen den Berechnungsmethoden der Rohrreibungszahl nach Prandtl und Blasius für einen Bereich der Reynoldszahl von $1 \cdot 10^5$ bis $2 \cdot 10^5$ und relative Abweichung der Berechnung mit der Formel nach Prandtl gegenüber jener mit der Formel nach Blasius .....	182
Abbildung 8-4: Verlauf des Chemical Engineering Plant Cost Index (CEPCI) von 1950 bis 2013, Basisjahr des CEPCI: 1957, Basisjahr der vorliegenden Kostenrechnung: 2012 [124; 160] .....	185
Abbildung 8-5: Druckverlustcharakteristik der Spacer-gefüllten Kanäle für eine Kanalhöhe von 1 mm; ausgewertet für verschiedene Drücke im Kanal; die Markierungen zeigen die Auswertung der experimentell ermittelten Druckverlustcharakteristik eines Spacer nach [81]; Linien und Formeln zeigen das zugehörige Regressionspolynom zweiten Grades, aus denen die Druckverlustcharakteristik des porösen Körpers gewonnen werden .....	186
Abbildung 8-6: Druckverlauf auf der Feedseite des Membranmoduls inklusive Zulauf- und Ablaufbereich bei einer Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in den Membranstapel von $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ; Überdruck bezogen auf einem Retentatdruck von ca. 4 bar (400000 Pa).....	188
Abbildung 8-7: Strömungsverteilung innerhalb der Querschnittserweiterung und Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung der Anströmung des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen .....	189

Abbildung 8-8:	Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung innerhalb von drei Feedkanälen der Modulmitte – nummeriert von oben nach unten innerhalb des Moduls – 10 mm hinter dem Anfang des Membranstapels für eine Ziel-Eintrittsgeschwindigkeit in die Feedkanäle von $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ im Prototyp-Modul a) ohne Leitbleche; b) mit drei geraden Leitblechen; c) mit drei gekrümmten Leitblechen; d) mit zwei gekrümmten Leitblechen.....	190
Abbildung 8-9:	Zusammensetzung der Stromgestehungskosten aus Investitionskosten, Betriebs- und Instandhaltungskosten, Brennstoffkosten und Zertifikatkosten des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen; Angaben in $\text{ct}\cdot\text{kWh}^{-1}$ .....	192
Abbildung 8-10:	$\text{CO}_2$ -Permeationsstrom am Modulende der zweiten Trennstufe und zugehörige Modullänge bei variablem Abtrenngrad für Eintrittsgeschwindigkeiten von $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , $1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , $2,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ und $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .....	193
Abbildung 8-11:	Spezifische Membranfläche je Tonne permeiertes $\text{CO}_2$ in der zweiten Trennstufe bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für verschiedene Kombinationen von Kanalhöhen im Feed und Permeat.....	193
Abbildung 8-12:	Gesamte Membranfläche und Nettoverbrauch des $\text{CO}_2$ -Abtrennprozesses bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeiten der ersten und zweiten Trennstufe für Kanalhöhen im Feed von 2 mm und im Permeat von 1,5 mm (Referenzfall); Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe von $0,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ bis $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ eingestellt und Eintrittsgeschwindigkeit in der zweiten Trennstufe von $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ bis $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ variiert; gestrichelte Linien verbinden minimale Membranfläche beziehungsweise minimalen Nettoverbrauch für jede Eintrittsgeschwindigkeit in der ersten Trennstufe .....	194
Abbildung 8-13:	Spezifische Membranfläche bei Variation der Eintrittsgeschwindigkeit für ein, zwei und drei Kompartimente (Komp) in der ersten Trennstufe des hinsichtlich der Kanalhöhe optimierten Falls .....	195
Abbildung 8-14:	Benötigte Membranfläche der ersten Trennstufe bei variabler Unterteilung des Membranmoduls in zwei Kompartimente für den hinsichtlich Kanalhöhe und Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall; erstes Kompartiment wird im Gleichstrom oder Gegenstrom betrieben; zweites Kompartiment wird im Gegenstrom betrieben.....	196
Abbildung 8-15:	Auswirkung der Rundung der Anzahl an Membranmodulen auf die benötigte Membranfläche bei konstantem Abtrenngrad und Variation der Modulbreite für eine variable Modulhöhe – also Modulhöhe gleich Modulbreite – (durchgezogene Linien) und eine konstante Modulhöhe (gestrichelte Linien).....	197
Abbildung 8-16:	Auswirkungen der Variation der Modulhöhe bei konstantem Abtrenngrad der hinsichtlich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten ersten Trennstufe auf die gesamte Membranfläche und die Modullänge (links) und Zusammenhang zwischen der Membranfläche je Meter bezogen auf den Feedstrom je Modul und der Modullänge (rechts) ...	198

Abbildung 8-17: Packungsdichte (links) sowie Anzahl der Module und Membranfläche je Modul in der zweiten Trennstufe (rechts) bei Variation der Modulhöhe beziehungsweise -breite in der zweiten Trennstufe für den Referenzfall und den bezüglich Eintrittsgeschwindigkeit und Kanalhöhe optimierten Fall .....199

Abbildung 8-18: Durchmesser des Zulaufrohres (links) sowie Öffnungswinkel der Querschnittserweiterung (rechts) für Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe in beiden Trennstufen.....199

Abbildung 8-19: Anteil der Länge, die im reinen Gegenstrom betrieben werden kann an der Gesamtlänge der Membrantasche für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  sowie  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  bei Variation der Modulhöhe in der zweiten Trennstufe .....200

Abbildung 8-20: Druckverlust je Meter Rohrlänge für ein, zwei und drei Permeatrohre und Strömungsgeschwindigkeiten von  $4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  und  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  in der ersten Trennstufe (links) und in der zweiten Trennstufe (rechts) in Abhängigkeit der Modulhöhe.....201

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1:	Temperaturabhängigkeit der Permeanzen und der Selektivitäten gegenüber CO <sub>2</sub> für Polyactive®; Daten aus [30; 31; 32].....	13
Tabelle 2-2:	Vergleich der Modulbauformen [18; 19; 41; 42; 43].....	17
Tabelle 2-3:	Eckdaten des Referenzkraftwerks Nordrhein-Westfalen und Parameter des Rauchgases nach der konventionellen Rauchgasreinigung; Daten aus [16; 30].....	25
Tabelle 2-4:	Reinheitsanforderungen für das Rauchgas vor und für das CO <sub>2</sub> -Produktstrom nach dem membranbasierten CO <sub>2</sub> -Abtrennprozess, falls das CO <sub>2</sub> unterirdisch gespeichert wird [10; 30; 56].....	27
Tabelle 3-1:	Faktoren $F_1$ , $F_2$ und $F_3$ und charakteristische Kapazitätsgröße sowie Untergrenze und Obergrenze der Kapazitätsgröße zur Bestimmung der Anschaffungskosten des Bauteils in Standardausführung; Daten aus [108].....	61
Tabelle 3-2:	Materialfaktoren, Druckfaktoren und Bauteilfaktoren zur Bestimmung der Bauteilkosten für die im CO <sub>2</sub> -Abtrennprozess verwendeten Bauteile, die nicht in Standardausführung gefertigt werden; Daten aus [108].....	62
Tabelle 3-3:	Zusammenfassung der Annahmen zur Berechnung der Stromgestehungskosten.....	67
Tabelle 4-1:	Permeabilität $K$ und Parameter $C_2$ für die Druckverlustcharakteristik poröser Körper zur Modellierung des Druckverlustes Spacer-gefüllter Kanäle in FLUENT® für verschiedene Drücke und Kanalhöhen von 1 mm und 1,5 mm.....	73
Tabelle 5-1:	Ergebnisse der Simulation des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses mit integriertem Referenzmodul in beiden Trennstufen.....	101
Tabelle 5-2:	Investitionssummen der Teilanlagen des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses für den Referenzfall.....	103
Tabelle 5-3:	Parameter des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses bei Variation der Permeanzen der Membran für den jeweils hinsichtlich der Eintrittsgeschwindigkeit optimierten Fall.....	143
Tabelle 5-4:	Kraftwerkparameter zur Bestimmung des Rauchgasstroms bei Volllast nach [16; 30; 64] sowie bei 40 %, 60 % und 80 % Teillast.....	146
Tabelle 5-5:	Kostenoptimierte Verschaltung der Membranmodule der ersten und zweiten Trennstufe bei 40 %, 60 % und 80 % Teillast sowie Volllast.....	150
Tabelle 6-1:	Optimierte Modulgeometrie in beiden Trennstufen.....	165
Tabelle 6-2:	Randbedingungen des Kraftwerksprozesses und des CO <sub>2</sub> -Abtrennprozesses und Simulationsergebnisse des Abtrennprozesses mit optimierten Membranmodulen.....	166

Tabelle 8-1:	Technischer Vergleich der CO <sub>2</sub> -Abtrennung aus Kraftwerksrauchgas mittels chemischer Absorption und Membranen; Daten aus [10; 128; 141; 145; 146; 147; 148] .....	176
Tabelle 8-2:	Zusammensetzung und unterer Heizwert der verwendeten Steinkohlen .	178
Tabelle 8-3:	Parameter zur Bestimmung der binären Diffusionskoeffizienten $\mathcal{D}_{ij}$ .....	179
Tabelle 8-4:	Rohrreibungszahl $\lambda$ für hydraulisch glatte und raue Rohre in laminarer und turbulenter Strömung als Funktion der Reynoldszahl $Re$ und der relativen Rauigkeit $k/D$ [154; 155].....	181
Tabelle 8-5:	Ausgewählte Stoffströme im CO <sub>2</sub> -Abtrennprozess des Referenzfalls .....	191

# Nomenklatur

## Akronyme

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
ACM	Aspen Custom Modeler®
CCUS	Carbon Capture, Utilization and Storage
CEPCI	Chemical Engineering Plant Cost Index
CFD	Computational Fluid Dynamics
ENCAP	Enhanced Capture
EOR	Enhanced Oil Recovery
i.N.	im Normzustand (273,15 K; 1,01325 bar)
IEK-3	Institut für Energie- und Klimaforschung: Elektrochemische Verfahrenstechnik
IGCC	Integrated Gasification Combined Cycle
MTR	Membrane Technology & Research
RKW NRW	Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen
RWE	Rheinisch-Westfälisches Elektrizitätswerk
SGK	Stromgestehungskosten
SST	Shear Stress Transport
UDF	User Defined Function, benutzerdefinierte Funktion
WACC	Weighted Average Cost of Capital

## Summenformeln

<b>Summenformel</b>	<b>Chemische Verbindung</b>
Ar	Argon, elementar
C	Kohlenstoff, elementar
CH <sub>4</sub>	Methan
CO	Kohlenstoffmonoxid
CO <sub>2</sub>	Kohlenstoffdioxid
H	Wasserstoff, elementar
H <sub>2</sub>	Wasserstoff
H <sub>2</sub> O	Wasser
H <sub>2</sub> S	Schwefelwasserstoff
N	Stickstoff, elementar
N <sub>2</sub>	Stickstoff
NaOH	Natronlauge
NO <sub>x</sub>	Stickstoffoxide
O	Sauerstoff, elementar
O <sub>2</sub>	Sauerstoff
PBT	Polybutylenterephthalat
PEO	Polyethylenoxid
S	Schwefel, elementar
SO <sub>2</sub>	Schwefeldioxid
SO <sub>x</sub>	Schwefeloxide

**Lateinische Formelzeichen**

<b>Symbol</b>	<b>Einheit</b>	<b>Bedeutung</b>
$a$	-	Aktivität
$a$	-	Geometriefaktor der allgemeinen Druckverlustgleichung
$A$	$m^2$	(Membran-)Fläche
$A$	-	Vorfaktor der Reynoldszahl in der Druckverlustcharakteristik für Spacer
$Ab$	%	Abtrenngrad
$b$	$mol \cdot s \cdot kg^{-1}$	Molekülbeweglichkeit
$b$	-	Exponent der Reynoldszahl in der Druckverlustcharakteristik für Spacer
$B_1, B_2$	-	Zuschlagfaktoren auf die Anschaffungskosten für indirekte Kosten (Fracht, Versicherung, Steuern)
$B\&I_t$	Mio. €	Betriebs- und Instandhaltungskosten im Jahr $t$
$BK_t$	Mio. €	Brennstoffkosten im Jahr $t$
$c_i$	$mol \cdot m^{-3}$	molare Konzentration der Komponente $i$
$C$	m	Konstante, die die Trägheitsverluste mit dem dynamischen Druck im Forchheimer-Term für alle drei Raumrichtungen verbindet
$C_2$	m	Konstante im Forchheimer-Term für einen isotropen porösen Körper
$[C]$	m	Matrix der Konstanten $C$
$d$	m	Durchmesser
$D$	$m^2 \cdot s^{-1}$	thermodynamischer Diffusionskoeffizient
$\mathcal{D}_{ij}$	$m^2 \cdot s^{-1}$	binärer Diffusionskoeffizient der Komponenten $i$ und $j$
$[D]$	$m^2 \cdot s^{-1}$	Matrix der Diffusionskoeffizienten eines Mehrkomponentengemischs
$D_{ij}$	$m^2 \cdot s^{-1}$	Diffusionskoeffizient der Komponente $i$ in Komponente $j$ eines Mehrkomponentengemischs
$\mathcal{D}_{ij}$	$m^2 \cdot s^{-1}$	Maxwell-Stefan-Diffusionskoeffizient der Komponenten $i$ und $j$
$D_\omega$	$kg \cdot s^{-2} \cdot m^{-3}$	Cross-Diffusion
$E$	J	Gesamtenergie
$\dot{E}'''$	$W \cdot m^{-3}$	Quelle / Senke einer Energiedichte
$E_t$	J, kWh	im Jahr $t$ produzierte Strommenge
$f$	-	Faktor, Leistungsanteil bei Teillast in Bezug auf Volllast
$f_i$	bar	Fugazität der Komponente $i$
$\vec{F}$	-	beliebiges, stetiges und an der gesamten Oberfläche eines Volumens differenzierbares Vektorfeld
$F_1, F_2, F_3$	-	Faktoren zur Bestimmung der Anschaffungskosten über die Kapazitätsgröße des Bauteils
$F_{Bauteil}$	-	Gesamtzuschlagfaktor auf die Anschaffungskosten zur Bestimmung der Bauteilkosten
$F_{IS,1}, F_{IS,2}$	-	Zuschlagfaktor auf die Bauteilkosten für Unsi-

$F_M$	-	cherheiten, Gebühren und Sonstiges Zuschlagfaktor auf die Anschaffungskosten für andere Materialien als das Standardmaterial
$F_P$	-	Zuschlagfaktor auf die Anschaffungskosten für andere Betriebsdrücke als der Standarddruck
$F_{P,1}, F_{P,2}, F_{P,3}$	-	Faktoren zur Bestimmung des Zuschlagfaktors für andere Betriebsdrücke
$F_2$	-	Funktion zur Mischung der beiden Turbulenzmodelle ( $k$ - $\varepsilon$ -Modell und $k$ - $\omega$ -Modell)
$\bar{g}$	$m \cdot s^{-2}$	Erdbeschleunigung
$\bar{G}_K$	$kg \cdot s^{-3} \cdot m^{-1}$	Erzeugung der turbulenten kinetischen Energie durch gemittelte Geschwindigkeitsgradienten
$G_\omega$	$kg \cdot s^{-2} \cdot m^{-3}$	Erzeugung der spezifischen Dissipationsrate durch gemittelte Geschwindigkeitsgradienten
$h$	m, mm	Höhe
$h$	$kJ \cdot kg^{-1}$	Enthalpie
$H$	$MJ \cdot kg^{-1}$	Heizwert
$i$	%	kalkulatorischer Zinssatz
$I_0$	Mio. €	anfänglich anfallende Investitionssumme
$I_{\text{Bauteil}}$	Mio. €	Investitionssumme des Bauteils
$I_t$	Mio. €	im Jahr $t$ anfallende Investitionssumme
$j_i$	$kg \cdot s^{-1}$	massenbezogener Diffusionsstrom der Komponente $i$
$j_i''$	$kg \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$	massenbezogener Diffusionsstrom der Komponente $i$ pro Fläche
$J_i''$	$mol \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$	molarer Diffusionsstrom der Komponente $i$ pro Fläche
$\bar{J}''$	$mol \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$	Vektor der molaren Diffusionsströme pro Fläche
$k$	$m^2 \cdot s^{-2}$	turbulente kinetische Energie
$k_{ij}$	$m \cdot s^{-1}$	Stoffübergangskoeffizient der Komponente $i$ in Komponente $j$
$[K]$	$m \cdot s^{-1}$	Matrix der Stoffübergangskoeffizienten
$K$	$m^2$	Permeabilität eines porösen Körpers
$K_{CO_2,t}$	Mio. €	im Jahr $t$ anfallende Ausgabe beim Kauf von Emissionsrechten
$K^0_{\text{Anschaffung}}$	Mio. €	Anschaffungskosten des Bauteils, ausgelegt für den Standardzustand
$K_{\text{Anschaffung}}$	Mio. €	Anschaffungskosten des Bauteils, ausgelegt für Betriebsbedingungen
$K^0_{\text{Bauteil}}$	Mio. €	Bauteilkosten, ausgelegt für den Standardzustand
$K_{\text{Bauteil}}$	Mio. €	Bauteilkosten
$K_{CO_2,\text{vermieden}}$	$€ \cdot t_{CO_2}^{-1}$	CO <sub>2</sub> -Vermeidungskosten
$[K]$	$m^2$	Matrix, deren Diagonaleinträge die Permeabilität eines porösen Körpers in alle Raumrichtungen angeben
$l$	m	Abstand, Länge
$L_i$	$m^3(i.N.) \cdot m^{-2} \cdot h^{-1} \cdot bar^{-1}$	Permeanz der Komponente $i$
$\dot{m}$	$kg \cdot s^{-1}$	Massenstrom

## Nomenklatur

$\dot{m}'''$	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$	Quelle / Senke einer Massendichte
$n$	-	Anzahl der Stoffkomponenten
$n$	-	Faktor des Geschwindigkeitsprofils
$\dot{n}$	$\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}, \text{kmol}\cdot\text{h}^{-1}$	Stoffmengenstrom
$\dot{n}''$	$\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$	Stoffmengenstrom je Membranfläche
$N$	-	Anzahl
$O$	$\text{m}^2$	Oberfläche
$p$	bar, Pa	Druck
$P$	MW	Leistung
$P_{\text{CO}_2}$	$\text{€}\cdot\text{t}_{\text{CO}_2}^{-1}$	CO <sub>2</sub> -Zertifikatpreis
$P_{\text{Kohle}}$	$\text{€}\cdot\text{t}_{\text{Kohle}}^{-1}$	Kohlepreis je Tonne
$P_{\text{Membran}}$	$\text{€}\cdot\text{m}^{-2}$	Membranpreis je Quadratmeter
$P_i$	Barrer= $10^{-10} \text{cm}^3(\text{i.N.})\cdot\text{cm}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cmHg}^{-1}$	Permeabilität der Komponente $i$
$\dot{Q}$	MW	thermische Leistung, Wärmestrom
$r$	m	Radius
$\vec{r}$	m	Abstandsvektor
$R_i^V$	$\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$	Volumenbezogenen Nettoreaktionsrate der Komponente $i$
$S$	m	Filamentlänge eines gewebten Spacers in der Einheitszelle
$S$	$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$	molarer Sorptionskoeffizient
$S$	$\text{s}^{-1}$	Dehnungsgeschwindigkeit
$S_\phi$	-	allgemeiner Quellterm der skalaren Größe $\phi$
$SGK$	$\text{ct}\cdot\text{kWh}^{-1}$	Stromgestehungskosten
<i>Skewness</i>	-	Verformtheit von Zellen
[ <i>Sc</i> ]	-	Matrix der Schmidt-Zahlen
[ <i>Sh</i> ]	-	Matrix der Sherwood-Zahlen
$t$	s	Zeit, Jahr
$t_p^*$	-	Parameter des Stockmayer-Potentials einer polaren Komponente
$T$	K	Temperatur
$u$	J	innere Energie
$v$	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	Geschwindigkeit
$v_i, v_j$	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	Geschwindigkeit in $i$ - und $j$ -Richtung
$\vec{v}$	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	Geschwindigkeitsvektor
$\bar{v}$	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	gemittelte Geschwindigkeit
$v'$	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	Fluktuation der Geschwindigkeit
$ v $	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	Betrag der Geschwindigkeit
$V$	$\text{m}^3$	Volumen
$VF$	-	Vorfaktor
$VG$	%	Vermeidungsgrad
$x$	mol-%, mol/mol	Stoffmengenanteil
$\bar{x}$	mol-%, mol/mol	Vektor der Stoffmengenanteile
$x_{\text{reell}}$	-	reeller Exponent der Matrix der Diffusionskoeffizienten
$Y_k$	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-3}\cdot\text{m}^{-1}$	Dissipation von $k$ aufgrund der Turbulenz
$Y_\omega$	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}\cdot\text{m}^{-3}$	Dissipation von $\omega$ aufgrund der Turbulenz
$z$	m	Ortskoordinate

$z$	m	geodätische Höhe
$z_i$	-	Ladungszahl des Ions der Komponente $i$
$Z_{\text{Bauteil}}$	-	charakteristische Kapazitätsgröße des Bauteils

## Griechische Formelzeichen

Symbol	Einheit	Bedeutung
$\alpha$	°	Winkel zwischen zwei Spacerfilamenten
$\alpha$	-	Unter-Relaxationsfaktor
$\alpha_{ij}$	-	Selektivität bezüglich Komponente $i$ gegenüber Komponente $j$
$\alpha_n$	Å	Polarisierbarkeit der unpolaren Komponente
$\alpha_1$	-	Konstante im SST k- $\omega$ -Modell ( $\alpha_1=0,31$ )
$\alpha^*$	-	Korrektur zur Dämpfung der turbulenten Viskosität bei niedrigen turbulenten Reynoldszahlen
$\beta$	°	Winkel zwischen der Hauptströmungsrichtung und den Filamenten
$Y_1, Y_2, Y_3$	-	Parameter der Sherwood-Korrelation
$\Gamma_\phi$	-	allgemeiner Leitungsterm der skalaren Größe $\phi$
$\Gamma_k$	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$	effektives Diffusionsvermögen von $k$
$\Gamma_\omega$	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$	effektives Diffusionsvermögen von $\omega$
$\delta$	m, nm	Dicke
$\delta_{ij}$	-	Kronecker-Delta
$\varepsilon$	%	Porosität
$\varepsilon$	$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-3}$	Dissipationsrate der turbulenten kinetischen Energie
$\varepsilon_i$	J	Tiefe des Potentialwalls im Lennard-Jones-Potential
$\zeta$	-	Widerstandsbeiwert
$\eta$	%	Wirkungsgrad, Moduleffizienz
$\eta$	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$	dynamische Viskosität
$\theta$	°	Winkel zwischen zwei Kanten einer Zelle
$\lambda$	-	Luftverhältnis der Verbrennung
$\lambda$	$\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	Wärmeleitfähigkeit
$\lambda$	-	Rohrreibungszahl
$\mu$	Gibbs = $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$	(elektro-)chemisches Potential
$\nu$	-	stöchiometrischer Koeffizient
$\rho$	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$	Stoffdichte
$\sigma$	Å	Moleküldurchmesser
$\tau$	$\text{N}\cdot\text{m}^{-2}$	mechanische Spannung
$\varphi$	V	elektrisches Potential
$\varphi$	$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	Geschwindigkeitspotential
$\varphi$	°	Öffnungswinkel einer Querschnittserweiterung
$\varphi_i$	-	Fugazitätskoeffizient der Komponente $i$
$\phi$	-	beliebige skalare Größe
$\phi'$	-	Fluktuation der skalaren Größe $\phi$
$\omega$	$\text{s}^{-1}$	spezifische Dissipationsrate der turbulenten kinetischen Energie

## Tiefgestellte Indizes

<b>Symbol</b>	<b>Beschreibung</b>
aus	aus der Anlage austretender Strom
<i>b</i>	Bauteilindex
B	Bulk, Hauptströmung
benetzt	benetzter Teil eines Körpers
D	diffusiver Stoffstrom
dyn	dynamisch
e	gleichseitiger Grundkörper
eff	effektiv
el	elektrisch
<i>f</i>	Index für die Zelloberflächen
F	Feed
F	Filament
frei	nicht belegter Teil des Körpers
GS	Grenzschicht
h	hydraulisch
h	Index für beliebige Quellgröße in der Energiegleichung
<i>i</i>	Komponente, bevorzugt permeierende Komponente
<i>i</i>	erster Index für die Raumrichtung (x-, y-, z-Richtung)
IS	Investitionssumme
<i>j</i>	zurückgehaltene Komponente
<i>j</i>	zweiter Index für die Raumrichtung (x-, y-, z-Richtung)
<i>k</i>	Zellenindex
K	konvektiver Stoffstrom
K	Kohle
Kanal	Größe / Eigenschaft eines Feed- oder Permeatkanals
m	Masse
M	Membran, Membranoberfläche
max	maximal
min	minimal
Modul	Größe / Eigenschaft eines Membranmoduls
<i>n</i>	Index für die Anzahl der Iterationen in FLUENT®
P	Permeat
prod	produziert
Prozess	Prozessgröße / -eigenschaft
R	Retentat
RG	Rauchgas
RKW	Referenzkraftwerk
Rohr	Größe / Eigenschaft eines Feed- oder Permeatrohrs
Spacer	Größe / Eigenschaft eines Spacers
Strömung	Größe ausgewertet unter realen Strömungsbedingungen
t	total
t	turbulent
<i>t</i>	Index für das Jahr einer Einnahme oder Ausgabe
th	thermisch
T,p	konstante Temperatur und konstanter Druck
u	unterer

WÜ	Wärmeübertrager
x	Index für beliebige Quellgröße in der Impulsgleichung
z	z-Richtung

### Hochgestellte Indizes

Symbol	Beschreibung
0	Bezugspunkt, Standardzustand
V	Volumenbezogene Größe

### Dimensionslose Kennzahlen

Formel der Kennzahl	Name
$Re = \frac{\rho \cdot v \cdot d_h}{\eta}$	Reynoldszahl
$[Sc] = \frac{\eta}{[D] \cdot \rho}$	Schmidt-Zahl
$[Sh] = \frac{[k] \cdot d_h}{[D]}$	Sherwood-Zahl

### Mathematische Operatoren und Symbole

Operator / Symbol	Beschreibung
$\Delta$	Delta, Differenzzeichen
$\nabla$	Nabla-Operator
$\partial$	Partielles Differential, Differentialzeichen
$\vec{r}$	Vektor
$[M]$	Matrix
$\bar{r}$	Tensor
$\Sigma$	Summenzeichen
$\int_V$	Volumenintegral
$\int_A$	Oberflächenintegral
$\forall$	für alle, Allquantor
$\in$	Element aus, Elementzeichen

### Konstanten

Symbol	Beschreibung
$F=96485 \text{ C} \cdot \text{mol}^{-1}$	Faraday-Konstante
$k=1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$	Boltzmann-Konstante
$R=8,314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	universelle Gaskonstante



## Literatur

- [1] Wissenschaftlicher Beirat der Bundesregierung - Globale Umweltveränderungen: *Klimawandel: Warum 2 °C?*. Factsheet Nr. 2/2009, 2009.
- [2] Bernstein, L. et al.: *Climate Change 2007: Synthesis Report: Contribution of Working Groups I, II and III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Pachauri, R. K. und Reisinger, A. (Hrsg.), Geneva, Switzerland, 2007.
- [3] Rat der Europäischen Union: *Standpunkt der EU für die Kopenhagener Klimakonferenz (7.-18. Dezember 2009) - Schlussfolgerungen des Rates*. 2009.
- [4] International Energy Agency: *World Energy Outlook 2012*. 2012.
- [5] Lackner, K.: *The Case for Carbon Capture and Storage*. In: Stolten, D. und Scherer, V. (Hrsg.): *Process Engineering for CCS Power Plants: Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*, Weinheim, 2011, pp. 3-9.
- [6] Kaya, Y.: *Impact of Carbon Dioxide Emission Control on GNP Growth: Interpretation of Proposed Scenarios*. Paper presented to the IPCC Energy and Industry Subgroup, Response Strategies Working Group, Paris, 1990.
- [7] Olajire, A.A.: *CO<sub>2</sub> capture and separation technologies for end-of-pipe applications – A review*. Energy, 35 (2010), pp. 2610-2628.
- [8] Schiebahn, S.; Grube, T.; Robinius, M.; Tietze, V.; Kumar, B. und Stolten, D.: *Power to gas: Technological overview, systems analysis and economic assessment for a case study in Germany*. International Journal of Hydrogen Energy, 40 (2015), pp. 4285-4294.
- [9] Europäische Kommission: *Konsultative Mitteilung zur Zukunft der CO<sub>2</sub>-Abscheidung und -Speicherung in Europa*. 2013.
- [10] European Academies Science Advisory Council: *Carbon Capture and Storage in Europe*. 2013.
- [11] Europäische Kommission: *Energy Roadmap 2050 Impact Assessment Part 2 Including Part II of Annex 1 'Scenarios - Assumptions and Results' and Annex 2 'Report on Stakeholders scenarios' [SEC(2011)1565/2]*. 2011.
- [12] Ausfelder, F.: *Verwertung und Speicherung von CO<sub>2</sub>*. DECHEMA, 2008.
- [13] Mertens, J.; Lepaumier, H.; Desagher, D. und Thielens, M.-L.: *Understanding ethanolamine (MEA) and ammonia emissions from amine based post combustion carbon capture: Lessons learned from field tests*. International Journal of Greenhouse Gas Control, 13 (2013), pp. 72-77.
- [14] Wessling, M.: *Physics of Membrane Separation of CO<sub>2</sub>*. In: Stolten, D. und Scherer, V. (Hrsg.): *Process Engineering for CCS Power Plants: Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*, 2011, pp. 297-318.
- [15] Brinkmann, T.; Pohlmann, J.; Bram, M.; Zhao, L.; Tota, A.; Jordan Escalona, N.; de Graaff, M. und Stolten, D.: *Investigating the influence of the pressure distribution in a membrane module on the cascaded membrane system for post-combustion capture*. International Journal of Greenhouse Gas Control, 39 (2015), pp. 194-204.
- [16] VGB PowerTech: *Konzeptstudie: Referenzkraftwerk Nordrhein-Westfalen (RWK NRW)*. 2004.
- [17] Ohlrogge, K.; Wind, J. und Peinemann, K.V.: *Verfahren zur Trennung von Gasen und Dämpfen*. In: Ohlrogge, K. und Ebert, K. (Hrsg.): *Membranen: Grundlagen, Verfahren und industrielle Anwendungen*, 2006, pp. 375-428.
- [18] Melin, T. und Rautenbach, R.: *Membranverfahren: Grundlagen der Modul- und Anlagenauslegung*. Berlin Heidelberg, 2007.

- [19] Favre, E.: *Polymeric Membranes for Gas Separation*. In: Editor-in-Chief: Drioli, E. und Giorno, L. (Hrsg.): *Comprehensive Membrane Science and Engineering*, Oxford, 2010, pp. 155-212.
- [20] Intergovernmental Panel on Climate Change: *Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage*. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2005. 442.
- [21] Bernardo, P.; Drioli, E. und Golemme, G.: *Membrane Gas Separation: A Review/State of the Art*. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 48 (2009), pp. 4638-4663.
- [22] Robeson, L.M.: *The upper bound revisited*. *Journal of Membrane Science*, 320 (2008), pp. 390-400.
- [23] Car, A.; Stropnik, C.; Yave, W. und Peinemann, K.-V.: *Tailor-made Polymeric Membranes based on Segmented Block Copolymers for CO<sub>2</sub> Separation*. *Advanced Functional Materials*, 18 (2008), pp. 2815-2823.
- [24] Wilfredo, Y.; Anja, C.; Jan, W. und Klaus-Viktor, P.: *Nanometric thin film membranes manufactured on square meter scale: ultra-thin films for CO<sub>2</sub> capture*. *Nanotechnology*, 21 (2010), p. 395301.
- [25] Yave, W.; Car, A.; Funari, S.S.; Nunes, S.P. und Peinemann, K.-V.: *CO<sub>2</sub>-Philic Polymer Membrane with Extremely High Separation Performance*. *Macromolecules*, 43 (2009), pp. 326-333.
- [26] Merkel, T.C.; Lin, H.; Wei, X. und Baker, R.: *Power plant post-combustion carbon dioxide capture: An opportunity for membranes*. *Journal of Membrane Science*, 359 (2010), pp. 126-139.
- [27] Merkel, T.C.; Lin, H.; Wei, X.; He, J.; Firat, B.; Amo, K.; Daniels, R. und Baker, R.: *A Membrane Process to Capture CO<sub>2</sub> from Coal-Fired Power Plant Flue Gas*. In: *NETL Review Meeting*. 2009.
- [28] Gebben, B.: *A water vapor-permeable membrane from block copolymers of poly(butylene terephthalate) and polyethylene oxide*. *Journal of Membrane Science*, 113 (1996), pp. 323-329.
- [29] Bondar, V.I.; Freeman, B.D. und Pinnau, I.: *Gas sorption and characterization of poly(ether-b-amide) segmented block copolymers*. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 37 (1999), pp. 2463-2475.
- [30] Zhao, L.; Riensche, E.; Weber, M. und Stolten, D.: *Cascaded Membrane Processes for Post-Combustion CO<sub>2</sub> Capture*. *Chemical Engineering & Technology*, 35 (2012), pp. 489-496.
- [31] Brinkmann, T.; Pohlmann, J.; Withalm, U.; Wind, J. und Wolff, T.: *Theoretical and Experimental Investigations of Flat Sheet Membrane Module Types for High Capacity Gas Separation Applications*. In: *14<sup>th</sup> Aachener Membran Kolloquium*. 2012. Aachen, Deutschland.
- [32] Brinkmann, T.; Wolff, T. und Pauls, J.-R.: *Post-Combustion Processes Employing Polymeric Membranes*. In: *2<sup>nd</sup> International Conference on Energy Process Engineering - Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*. 2011. Frankfurt/Main, Deutschland.
- [33] VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen: *VDI-Wärmeatlas*. 10. Auflage. 2006.
- [34] Brinkmann, T.; Pohlmann, J.; Withalm, U.; Wind, J. und Wolff, T.: *Theoretical and Experimental Investigations of Flat Sheet Membrane Module Types for High Capacity Gas Separation Applications*. *Chemie Ingenieur Technik*, 85 (2013), pp. 1210-1220.
- [35] Caldwell, D.J.: *Membrane System Helps Clean Up Sugary Wash Water*. *Industrial WaterWorld*, 12 (2012).

- [36] Industries, E.: *Efficient gas separation - Close-up view of a hollow fiber membrane module*. <http://www.sepuran.com/product/sepuran/en/Pages/default.aspx>, Zugriff am 18.07.2014.
- [37] MICRODYN-NADIR: *MICRODYN® Mikrofiltrationsmodule*. Bildergalerie, <http://www.microdyn-nadir.com/de/Produkte/MICRODYN®/>, Zugriff am 18.07.2014.
- [38] Pall Corporation: *Water Processing - Pall Disc-Tube® Filter Technology*. Prospekt, [www.pall.com/pdf/Disc-Tube\\_Filter\\_Technology-DT100b.pdf](http://www.pall.com/pdf/Disc-Tube_Filter_Technology-DT100b.pdf), Zugriff am 18.07.2014.
- [39] Wiley Online Library: *Encyclopedia of Membrane Science and Technology*. <http://onlinelibrary.wiley.com/book/10.1002/9781118522318/homepage/videos.htm>, Zugriff am
- [40] Goedecke, R.: *Fluidverfahrenstechnik: Grundlagen, Methodik, Technik, Praxis*. 2011.
- [41] Baker, R.W.: *Membrane Technology and Applications*. 2. Auflage. 2004.
- [42] Fane, A.G.; Abdul, J.; D'Souza, N.D.; Madaeni, S.; Parameshwaran, K. und Ye, Y.: *Membrane technologies for meat processing waste streams*. 2005.
- [43] Scholz, M.; Wessling, M. und Balster, J.: *Design of Membrane Modules for Gas Separations*. In: Drioli, E. und Barbieri, G. (Hrsg.): *Membrane Engineering for the Treatment of Gases: Volume 1: Gas-separation Problems with Membranes*. 1. Auflage, 2011, pp. 125-149.
- [44] Europäische Zentralbank: *Wechselkurs US-Dollar zu Euro*. <http://www.ecb.europa.eu/stats/exchange/eurofxref/html/eurofxref-graph-usd.en.html>, Zugriff am 21.07.2014.
- [45] Europäische Zentralbank: *Wechselkurs Australische Dollar zu Euro*. <http://www.ecb.europa.eu/stats/exchange/eurofxref/html/eurofxref-graph-aud.en.html>, Zugriff am 21.07.2014.
- [46] Bayer, C.; Follmann, M.; Breisig, H.; Wienk, I.M.; Cuperus, F.P.; Wessling, M. und Melin, T.: *On the Design of a 4-End Spiral-Wound L/L Extraction Membrane Module*. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 52 (2012), pp. 1004-1014.
- [47] Fimbres-Weihs, G.A. und Wiley, D.E.: *Review of 3D CFD modeling of flow and mass transfer in narrow spacer-filled channels in membrane modules*. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 49 (2010), pp. 759-781.
- [48] Fritzmann, C.: *Micro-Structured Spacers for Intensified Membrane Process Performance*. RWTH Aachen, 2012.
- [49] Ho, W.S.W. und Sirkar, K.K.: *Membrane Handbook*. 1992.
- [50] Da Costa, A.R.; Fane, A.G. und Wiley, D.E.: *Spacer characterization and pressure drop modelling in spacer-filled channels for ultrafiltration*. *Journal of Membrane Science*, 87 (1994), pp. 79-98.
- [51] Sijbesma, H.; Nymeijer, K.; van Marwijk, R.; Heijboer, R.; Potreck, J. und Wessling, M.: *Flue gas dehydration using polymer membranes*. *Journal of Membrane Science*, 313 (2008), pp. 263-276.
- [52] Effenberger, H.: *Dampferzeugung*. Berlin, Heidelberg, New York, 2000.
- [53] Lenz, W.: *Dampferzeugungsanlagen*. In: Beitz, W.; Dubbel, H. und Küttner, K.H. (Hrsg.): *Dubbel: Taschenbuch für den Maschinenbau*. 16. Auflage, 2013.
- [54] Hünting, H.: *Gips - Baustoff und seine Eigenschaften*. [http://www.kikknauf.com/app/download/6811242284/Lehrgang%2BGIPS\\_Basis\\_Skipt\\_LTN.docx](http://www.kikknauf.com/app/download/6811242284/Lehrgang%2BGIPS_Basis_Skipt_LTN.docx), Zugriff am 09.06.2015.
- [55] RWE Power AG: *Der Hochleistungswäscher REAplus*. [www.rwe.com/web/cms/mediablob/de/254152/data/235578/4/rwe-power-ag/presse-downloads/braunkohle/Broschuere-Der-Hochleistungswaescher-REAplus.pdf](http://www.rwe.com/web/cms/mediablob/de/254152/data/235578/4/rwe-power-ag/presse-downloads/braunkohle/Broschuere-Der-Hochleistungswaescher-REAplus.pdf), Zugriff am 11.06.2015.

- [56] de Visser, E.; Hendriks, C.; Barrio, M.; Mølnvik, M.J.; de Koeijer, G.; Liljemark, S. und Le Gallo, Y.: *Dynamis CO<sub>2</sub> quality recommendations*. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2 (2008), pp. 478-484.
- [57] Franz, J.; Schiebahn, S.; Zhao, L.; Riensche, E.; Scherer, V. und Stolten, D.: *Investigating the influence of sweep gas on CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> membranes for post-combustion capture*. International Journal of Greenhouse Gas Control, 13 (2013), pp. 180-190.
- [58] Zhao, L.; Riensche, E.; Blum, L. und Stolten, D.: *How gas separation membrane competes with chemical absorption in post-combustion capture*. 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, 4 (2011), pp. 629-636.
- [59] Span, R.: *Stoffeigenschaften von Kohlendioxid*. In: Fishedick, M.; Görner, K. und Thomeczek, M. (Hrsg.): *CO<sub>2</sub>: Abtrennung, Speicherung, Nutzung*, 2015, pp. 69-92.
- [60] Riensche, E.; Nazarko, J.; Schiebahn, S.; Weber, M.; Zhao, L. und Stolten, D.: *Capture Options for Coal Power Plants*. In: Stolten, D. und Scherer, V. (Hrsg.): *Process Engineering for CCS Power Plants: Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*, 2011, pp. 45-81.
- [61] Paschotta, R.: *Residuallast*. <https://www.energie-lexikon.info/residuallast.html>, Zugriff am 15.06.2015.
- [62] Feldmüller, A.: *Wie flexibel ist der heutige konventionelle Kraftwerkspark aus Herstellersicht?* In: *Workshop "Flexibilität von Bestandskraftwerken - Entwicklungsoptionen für den Kraftwerkspark durch Retrofit"*. 2013. Berlin.
- [63] Schröder, H.C. und Schlessing, J.: *Sichere Feuerung unter Berücksichtigung des Umweltschutzes*. VGB Kraftwerkstechnik, 79. Jahrgang (1999), pp. 58-64.
- [64] Roeder, V. und Kather, A.: *Part Load Behaviour of Power Plants with a Retrofitted Post-combustion CO<sub>2</sub> Capture Process*. Energy Procedia, 51 (2014), pp. 207-216.
- [65] He, X. und Hägg, M.-B.: *Hollow fiber carbon membranes: Investigations for CO<sub>2</sub> capture*. Journal of Membrane Science, 378 (2011), pp. 1-9.
- [66] Hussain, A. und Hägg, M.-B.: *A feasibility study of CO<sub>2</sub> capture from flue gas by a facilitated transport membrane*. Journal of Membrane Science, 359 (2010), pp. 140-148.
- [67] Abdelall, S.: *Investigation of Turbo-Machinery and Heat Exchangers in a Membrane Post-Combustion System for CO<sub>2</sub>-Capture*. Fachhochschule Aachen, Masterarbeit, 2013. Betreuer: Dr. Dr. Li Zhao.
- [68] Ek Weis, D.: *Investigation of CO<sub>2</sub> Avoidance Behaviour of Membrane Capture in Post Combustion Processes*. Chalmers University of Technology, Masterarbeit, 2011. Betreuer: Dr. Dr. Li Zhao.
- [69] Ding, W.: *Application of CFD in Membrane Technique*. Universität Duisburg-Essen, Dissertation, 2012.
- [70] Coroneo, M.; Montante, G.; Baschetti, M.G. und Paglianti, A.: *CFD modelling of inorganic membrane modules for gas mixture separation*. Chemical Engineering Science, 64 (2009), pp. 1085-1094.
- [71] Staudacher, M.: *Modellierung von Transportphänomenen in Gas- und Dampfermeationsmodulen*. Technische Universität Wien, Dissertation, 2002.
- [72] Pfennig, A.: *Thermodynamik der Gemische*. 2004.
- [73] Al Achkar, N.: *Design of a counter-current membrane module and analysis of its techno-economic impact on a membrane-based post-combustion process*. Fachhochschule Aachen, Bachelorarbeit, 2015. Betreuer: Sebastian Luhr.
- [74] Schiebahn, S.: *Effizienzoptimierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung in IGCC-Kraftwerken mittels Wassergas-Shift-Membranreaktoren*. RWTH Aachen, Dissertation, 2014.
- [75] Bird, R.B.; Stewart, W.E. und Lightfoot, E.N.: *Transport Phenomena*. 2007.

- [76] Mersmann, A.: *Stoffübertragung*. 2013.
- [77] Krishna, R. und Wesselingh, J.A.: *The Maxwell-Stefan approach to mass transfer*. Chemical Engineering Science, 52 (1997), pp. 861-911.
- [78] Kraume, M.: *Transportvorgänge in der Verfahrenstechnik: Grundlagen und apparative Umsetzungen*. Berlin Heidelberg New York, 2004.
- [79] Taylor, R. und Krishna, R.: *Multicomponent Mass Transfer*. 1993.
- [80] Schwinge, J.; Neal, P.R.; Wiley, D.E.; Fletcher, D.F. und Fane, A.G.: *Spiral wound modules and spacers: Review and analysis*. Journal of Membrane Science, 242 (2004), pp. 129-153.
- [81] Meißner, J.: *Druckverlustcharakteristik längsangeströmter Gewebe*. RWTH Aachen, Studienarbeit, 1995.
- [82] ANSYS, Inc.: *ANSYS Meshing User's Guide 14.5*. (2012).
- [83] ANSYS, Inc.: *Introduction to ANSYS Meshing - 14.0 Release*. (2011).
- [84] Maslo, S.: *Optimierung der Geometrie eines Gegenstrom-Membranmoduls zur Gastrennung mittels CFD-Simulation*. Fachhochschule Aachen, Masterarbeit, 2014. Betreuer: Sebastian Luhr.
- [85] ANSYS, Inc.: *Introduction to ANSYS ICEM CFD, Lecture 7 Introduction ICEM Hexa - 13.0 Release*. (2010).
- [86] ANSYS, Inc.: *ANSYS ICEM CFD Help Manual 14.5*. (2012).
- [87] ANSYS, Inc.: *ANSYS ICEM CFD User Manual 14.5*. (2012).
- [88] Marquardt, W.: *Modellbildung und Analyse verfahrenstechnischer Prozesse*. 2008.
- [89] ANSYS, Inc.: *ANSYS FLUENT Theory Guide 14.5*. (2012).
- [90] Bohl, W.E., W.: *Technische Strömungslehre*. Würzburg, 2005.
- [91] Richardson, L.F.: *Weather Predictions by Numerical Process*, 1922.
- [92] Schröder, W.: *Fluidmechanik*. 2004.
- [93] Karthik, T.S.D.: *Turbulence Models and Their Applications*. In: 10<sup>th</sup> Indo German Winter Academy. 2011. Surajkund, Delhi, Indien.
- [94] ANSYS, Inc.: *ANSYS FLUENT User's Guide 14.5*. (2012).
- [95] Herwig, H.: *Strömungsmechanik A-Z: Eine systematische Einordnung von Begriffen und Konzepten der Strömungsmechanik*. 2004.
- [96] Prechter, H.: *Gesichtspunkte zur Auslegung von Diffusoren unter Berücksichtigung neuerer Forschungsergebnisse*. Der Maschinenmarkt, 82 (1961), pp. 19-26.
- [97] Lin, J.C.: *Review of research on low-profile vortex generators to control boundary-layer separation*. Progress in Aerospace Sciences, 38 (2002), pp. 389-420.
- [98] International Energy Agency: *Projected Costs of Generating Electricity*. 2010.
- [99] Konstantin, P.: *Praxisbuch Energiewirtschaft: Energieumwandlung, -transport und -beschaffung im liberalisierten Markt*. 2009.
- [100] Loderer, C. und Wälchli, U.: *Handbuch der Bewertung, Band 2: Unternehmen*. 5. Auflage., Zürich, 2010.
- [101] KPMG: *Kapitalkostenstudie 2014 Risikoberücksichtigung, Risikoäquivalenz, Risikoteilung*. 2014.
- [102] Öko-Institut e.V.: *Stromgestehungskosten von Großkraftwerken*. 1998.
- [103] Zero Emissions Platform: *The Costs of CO<sub>2</sub> Capture, Transport and Storage*. 2011.
- [104] Wissel, S.; Fahl, U.; Blesl, M. und Voß, A.: *Erzeugungskosten zur Bereitstellung elektrischer Energie von Kraftwerksoptionen in 2015*. 2010.

- [105] ISE, F.: *Stromgestehungskosten erneuerbarer Energien*. 2013.
- [106] Abu-Zahra, M.R.M.; Niederer, J.P.M.; Feron, P.H.M. und Versteeg, G.F.: *CO<sub>2</sub> Capture from Power Plants Part II. A Parametric Study of the economical performance based on mono-ethanolamine*. International Journal of Greenhouse Gas Control, 1 (2007), pp. 135-142.
- [107] Wend, A.: *Wirtschaftlichkeitsanalyse von IGCC Kraftwerken mit CCS unter Verwendung von Wassergas-Shift-Membranreaktoren*. RWTH Aachen, Bachelorarbeit, 2013. Betreuer: Sebastian Schiebahn.
- [108] Turton, R.; Bailie, R.C.; Whiting, W.B. und Shaeiwitz, J.A.: *Analysis, Synthesis, and Design of Chemical Processes*. 4. Auflage 2012.
- [109] Zhao, L.; Menzer, R.; Riensche, E.; Blum, L. und Stolten, D.: *Concepts and investment cost analyses of multi-stage membrane systems used in post-combustion processes*. Energy Procedia, 1 (2009), pp. 269-278.
- [110] Hendriks, C.: *Carbon Dioxide Removal from Coal-Fired Power Plants*. 1994.
- [111] Erdmann, G. und Zweifel, P.: *Energieökonomik: Theorie und Anwendungen*. 2008.
- [112] He, X.; Fu, C. und Hägg, M.-B.: *Membrane system design and process feasibility analysis for CO<sub>2</sub> capture from flue gas with a fixed-site-carrier membrane*. Chemical Engineering Journal, 268 (2015), pp. 1-9.
- [113] van der Sluijs, J.P.; Hendriks, C.A. und Blok, K.: *Feasibility of Polymer Membranes for Carbon Dioxide Recovery from Flue Gases*. Energy Conversion and Management, 33 (1992), pp. 429-436.
- [114] *Kohlepreis in US\$ - Historische Kurse*. <http://www.finanzen.net/rohstoffe/kohlepreis/historisch>, Zugriff am 17.03.2015.
- [115] Agentur für Erneuerbare Energien: *Entwicklung der Brennstoffpreise fossiler Rohstoffe - Metaanalyse zur Brennstoffpreisentwicklung fossiler Rohstoffe in verschiedenen Studien und Vergleich mit der bisherigen Entwicklung*. <http://www.forschungsradar.de/metaanalysen/einzelansicht/news/studienvergleich-entwicklung-der-brennstoffpreise-fossiler-rohstoffe.html>, Zugriff am 30.06.2015.
- [116] Schlesinger, M.: *Energieszenarien für ein Energiekonzept der Bundesregierung*. 2010.
- [117] BP p.l.c.: *BP Energy Outlook 2035*. 2015.
- [118] Gerner, D.: *Zuteilung der CO<sub>2</sub>-Zertifikate in einem Emissionshandelssystem*. Universität Kassel, Masterarbeit, 2012. Betreuer: Prof. Dr. Alexander Roßnagel.
- [119] Das europäische Parlament und der Rat der europäischen Union: *RICHTLINIE 2009/29/EG DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 23. April 2009 zur Änderung der Richtlinie 2003/87/EG zwecks Verbesserung und Ausweitung des Gemeinschaftssystems für den Handel mit Treibhausgasemissionszertifikaten*. Änderung 11, Artikel 10 Abs. 1, 23. April 2009.
- [120] European Energy Exchange: *Emissions Auctions*. <http://www.eex.com/en/products/environmentals/emission-allowances/emissions-auctions/overview>, Zugriff am 17.03.2015.
- [121] European Energy Exchange: *ECarbix (EUA)*. <http://www.eex.com/en/market-data/emission-allowances/spot-market/ecarbix>, Zugriff am 12.02.2015.
- [122] dena: *Integration der erneuerbaren Energien in den deutschen/europäischen Strommarkt*. 2012.
- [123] Bundesnetzagentur: *Kraftwerksliste der Bundesnetzagentur - Stand: 01.06.2015*. [http://www.bundesnetzagentur.de/cn\\_1412/DE/Sachgebiete/ElektrizitaetundGas/Unternehmen\\_Institutionen/Versorgungssicherheit/Erzeugungskapazitaeten/Kraftwerksliste/kraftwerksliste-node.html](http://www.bundesnetzagentur.de/cn_1412/DE/Sachgebiete/ElektrizitaetundGas/Unternehmen_Institutionen/Versorgungssicherheit/Erzeugungskapazitaeten/Kraftwerksliste/kraftwerksliste-node.html), Zugriff am 26.08.2015.

- [124] Chemical Engineering: *Economic Indicators*. [http://www.chemengonline.com/Assets/CHE15\\_mk\\_economicindicators.pdf](http://www.chemengonline.com/Assets/CHE15_mk_economicindicators.pdf), Zugriff am 19.03.2015.
- [125] Persönliche Kommunikation mit Notzke, H., 2015.
- [126] Johnson, J. und Busch, M.: *Engineering Aspects of Reverse Osmosis Module Design*. 2009.
- [127] Stolten, D. und Scherer, V.: *Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*. 2011.
- [128] Danko, P.: *World's First Full-Scale 'Clean' Coal Plant Opens in Canada*. <http://saskpowerccs.com/newsandmedia/latest-news/worlds-first-full-scale-clean-coal-plant-opens-in-canada/>, Zugriff am 30.05.2015.
- [129] Global CCS Institute: *CO<sub>2</sub> Capture Technologies - Pre Combustion Capture*. 2012.
- [130] Walspurger, S.; van Dijk, E. und van den Brink, R.: *CO<sub>2</sub> Removal in Coal Power Plants via Pre-Combustion with Physical Absorption*. In: Stolten, D. und Scherer, V. (Hrsg.): *Process Engineering for CCS Power Plants: Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*, 2011, pp. 241-268.
- [131] Department of Mech. & Structural Eng. & Material Science: *IGCC State-of-the-art Report, A Part of: EU-FP7 - Low Emission Gas Turbine Technology for Hydrogen-rich Syngas H2-IGCC, Sub Project 4 - WP1-System Analysis*. April 2010.
- [132] Kanniche, M.; Gros-Bonnivard, R.; Jaud, P.; Valle-Marcos, J.; Amann, J.-M. und Bouallou, C.: *Pre-combustion, post-combustion and oxy-combustion in thermal power plant for CO<sub>2</sub> capture*. *Applied Thermal Engineering*, 30 (2010), pp. 53-62.
- [133] Spigarelli, B.P. und Kawatra, S.K.: *Opportunities and challenges in carbon dioxide capture*. *Journal of CO<sub>2</sub> Utilization*, 1 (2013), pp. 69-87.
- [134] International Energy Agency Greenhouse Gas R&D Programme: *Operating Flexibility of Power Plants with CCS, Section D - Review of flexibility of power plants with CCS*. Juni 2012.
- [135] Czyperek, M.; Zapp, P.; Bouwmeester, H.J.M.; Modigell, M.; Ebert, K.; Voigt, I.; Meulenberg, W.A.; Singheiser, L. und Stöver, D.: *Gas separation membranes for zero-emission fossil power plants: MEM-BRAIN*. *Journal of Membrane Science*, 359 (2010), pp. 149-159.
- [136] Beggel, F.; Nauels, N. und Modigell, M.: *CO<sub>2</sub> Separation via the Oxyfuel Process with O<sub>2</sub>-Transport Membranes in Coal Power Plants*. In: Stolten, D. und Scherer, V. (Hrsg.): *Process Engineering for CCS Power Plants: Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants*, 2011, pp. 405-430.
- [137] International Energy Agency: *CCS Retrofit: Analysis of the Global Installed Power Plant Fleet*. 2012.
- [138] World Resources Institute: *Global Coal Risk Assessment: Data Analysis and Market Research*. 2012.
- [139] Baerns, M.; Behr, A.; Brehm, A.; Gmehling, J.; Hinrichsen, K.O.; Hofmann, H.; Onken, U.; Palkovits, R. und Renken, A.: *Technische Chemie*. 2014.
- [140] Global CCS Institute: *CO<sub>2</sub> Capture Technologies - Post Combustion Capture (PCC)*. 2012.
- [141] Moser, P.; Schmidt, S.; Wallus, S.; Ginsberg, T.; Sieder, G.; Clausen, I.; Palacios, J.G.; Stoffregen, T. und Mihailowitsch, D.: *Enhancement and Long-Term Testing of Optimised Post-Combustion Capture Technology – Results of the Second Phase of the Testing Programme at the Niederaussemer Pilot Plant*. *Energy Procedia*, 37 (2013), pp. 2377-2388.
- [142] Behr, P. und Heischkamp, E.: *Chemische Waschprozesse*. In: Fishedick, M.; Görner, K. und Thomeczek, M. (Hrsg.): *CO<sub>2</sub>: Abtrennung, Speicherung, Nutzung*, 2015, pp. 298-314.

- [143] Schmidt, S. und Moser, P.: *CO<sub>2</sub>-Abtrennung mit Monoethanolamin für braunkohlegefeuerte Kraftwerke*. VGB PowerTech - Digital, (2014), pp. 35-41.
- [144] Uyanga, I.J. und Idem, R.O.: *Studies of SO<sub>2</sub>- and O<sub>2</sub>-Induced Degradation of Aqueous MEA during CO<sub>2</sub> Capture from Power Plant Flue Gas Streams*. Industrial & Engineering Chemistry Research, 46 (2007), pp. 2558-2566.
- [145] Brunetti, A.; Scura, F.; Barbieri, G. und Drioli, E.: *Membrane technologies for CO<sub>2</sub> separation*. Journal of Membrane Science, 359 (2010), pp. 115-125.
- [146] Amo, K.; He, Z.; Kaschemekat, J.; Merkel, T.; Mohammed, M.; Pande, S.; Wei, X. und White, S.: *Slipstream testing of a membrane CO<sub>2</sub> capture process*. In: 2012 NETL CO<sub>2</sub> Capture Technology Meeting, Pittsburgh, PA. 2012.
- [147] Favre, E.: *Carbon dioxide recovery from post-combustion processes: Can gas permeation membranes compete with absorption?* Journal of Membrane Science, 294 (2007), pp. 50-59.
- [148] Zhao, M.; Minett, A.I. und Harris, A.T.: *A review of techno-economic models for the retrofitting of conventional pulverised-coal power plants for post-combustion capture (PCC) of CO<sub>2</sub>*. Energy & Environmental Science, 6 (2013), pp. 25-40.
- [149] Oeljeklaus, G. und Mulhaupt, S.: *Chemische Wäschen im Kraftwerksprozess*. In: Fishedick, M.; Görner, K. und Thomeczek, M. (Hrsg.): *CO<sub>2</sub>: Abtrennung, Speicherung, Nutzung*, 2015, pp. 350-370.
- [150] Hirschfelder, J.O.; Curtiss, C.F. und Bird, R.B.: *Molecular theory of gases and liquids*. 1954.
- [151] National Institute of Standards and Technology: *NIST Chemistry WebBook*. <http://webbook.nist.gov/chemistry/>, Zugriff am 22.04.2015.
- [152] Schrobilgen, G.J.: *Encyclopedia Britannica - Noble gas*. <http://www.britannica.com/EBchecked/topic/416955/noble-gas>, Zugriff am 22.04.2015.
- [153] Alopaeus, V. und Norden, H.V.: *A calculation method for multicomponent mass transfer coefficient correlations*. Computers and Chemical Engineering, 23 (1999), pp. 1177-1182.
- [154] Moody, L.F. und Princeton, N.J.: *Friction factors for pipe flow*. Transactions of the A.S.M.E., 66 (1944), pp. 671-684.
- [155] Grasemann, K.: *Druckverlustminimale Rohrleitungsführungen von Abdampfleitungen in Großkraftwerksanlagen*. Ruhr-Universität Bochum, Dissertation, 2013.
- [156] Schade, H. und Kunz, E.: *Strömungslehre*. 2007.
- [157] *Lexikon der Physik - Gaußscher Satz*. <http://www.spektrum.de/lexikon/physik/gausscher-satz/5619>, Zugriff am 22.06.2015.
- [158] ANSYS, Inc.: *ANSYS FLUENT UDF Manual 14.5*. (2012).
- [159] Vatavuk, W.M.: *Updating the CE Plant Cost Index*. Chemical Engineering, Januar 2002. 62-70.
- [160] Rennola, L.: *Chemical Engineering Plant Cost Index from 1950 to 2008*. [webdelprofesor.ula.ve/ingenieria/leonardo/MatApoyo/EvalProyectos/CEPCI\\_1950\\_2006.xls](http://webdelprofesor.ula.ve/ingenieria/leonardo/MatApoyo/EvalProyectos/CEPCI_1950_2006.xls), Zugriff am 19.03.2015.

## Danksagung

Die vorliegende Dissertation ist während meiner Tätigkeit am Institut für Energie- und Klimaforschung – Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3) im Forschungszentrum Jülich entstanden.

Zunächst bedanke ich mich bei meinem Doktorvater und Institutsleiter des IEK-3, Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. Detlef Stolten für die Ermöglichung und Förderung meiner Arbeit. Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Jupke und Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. Manfred Wirsum danke ich für die Übernahme des Korreferats beziehungsweise des Prüfungsvorsitzes.

Für die konstruktiven Diskussionen und das stete Hinterfragen danke ich Frau Dr. Dr. Li Zhao als fachliche Betreuerin. In Fragen methodischer und administrativer Art standen mir stets Herr Dr. Michael Weber und Herr Dr. Thomas Grube als Leiter der Verfahrens- und Systemanalyse (VSA) zur Seite, denen ich hiermit dafür danke.

Die Arbeit am IEK-3 war geprägt von einer sehr angenehmen, hilfsbereiten Arbeitsatmosphäre. Den Kollegen der VSA, besonders Frau Vanessa Tietze, Herrn Dr. Alexander Otto, Herrn Dr. Jewgeni Nazarko und Herrn Bhunesh Kumar, gilt mein Dank für die zahlreichen, anregenden Diskussionen und Gespräche auf fachlicher, aber auch persönlicher Ebene.

Weiterhin danken möchte ich meinen Bürokollegen für das freundschaftliche, kollegiale und humorvolle Arbeitsumfeld, welches die Arbeit sehr angenehm gemacht hat. Auch ihr stets offenes Ohr für jegliche Fragen hat die Arbeit erleichtert. Besonderer Dank gilt Herrn Dr. Martin Robinus für die tolle Zeit im Büro und in Mittelamerika. Herrn Adrien Schwane möchte ich für die grammatikalische Durchsicht des Textes danken. Danken möchte ich zudem den Angestellten der Verwaltung Frau Anne Schröder, Frau Anke Wagner, Frau Annika van Aalst und Frau Sandra Hoffmann für die reibungslose und gut organisierte Zusammenarbeit.

Zudem gilt mein Dank allen Doktoranden des IEK-3 für die gegenseitige Unterstützung und die angenehme Arbeitsatmosphäre. Besonders hilfreich waren die Diskussionen mit Herrn Dr. Carsten Krupp im Bereich der Strömungssimulationen und mit Herrn Dr. Sebastian Schiebahn im Bereich Membrantechnik. Auch die unzähligen Spiele- und Kinoabende mit Herrn Dr. Maximilian Engelbracht, Herrn Dr. Johannes Keppner, Frau Dr. Tabea Mandt, Herrn Dr. Klaus Wedlich, Herrn Dr. Timm Bergholz, Frau Dr. Susanne Kuhri, Herrn Dr. Geert Tjarks, Herrn Marco Schleutker, Frau Anne Schulz und Herrn Philipp Jehnichen bleiben dankbar in freudiger Erinnerung.

Bedanken möchte ich mich auch bei allen Projektpartnern, besonders bei den Kollegen vom Helmholtz-Zentrum Geesthacht Herrn Dr. Torsten Brinkmann, Herrn Thorsten Wolff, Herrn Heiko Notzke, Herrn Jan Pohlmann, Herrn Dr. Sergey Shishatskiy und Frau Maria Graetz, für die vielen anregenden und interessanten Gespräche und Diskussionen. Meinen Bacheloranden und Masteranden Herrn Semir Maslo, Frau Nathalie Al Achkar und Herrn Franco Fähmann danke ich für ihre bereichernden Beiträge zu dieser Arbeit.

Seitens meiner Familie habe ich stets eine vorbehaltlose Unterstützung und Rückendeckung erhalten. Für diesen kraftspendenden Rückhalt bin ich besonders meinen Eltern Werner und Karin Luhr zutiefst dankbar. Meiner Freundin Pia Rütten danke ich ebenfalls für die stete private Unterstützung vor allem in der Endphase der Dissertation.



Band / Volume 322

**Langzeitstabilität der Polymerelektrolyt-Wasserelektrolyse bei reduziertem Iridiumgehalt**

C. G. Rakousky (2016), VII, 199 pp  
ISBN: 978-3-95806-147-7

Band / Volume 323

**Light induced water splitting using multijunction thin film silicon solar cells**

F. Urbain (2016), xi, 173, XLVI pp  
ISBN: 978-3-95806-148-4

Band / Volume 324

**Properties of convective gravity waves derived by combining global modeling and satellite observations**

Q. T. Trinh (2016), 140 pp  
ISBN: 978-3-95806-150-7

Band / Volume 325

**Feasible and Reliable Ab initio Atomistic Modeling for Nuclear Waste Management**

G. Beridze (2016), xix, 128 pp  
ISBN: 978-3-95806-151-4

Band / Volume 326

**Sauerstoffspeicher für die oxidkeramische Batterie: Herstellung, Charakterisierung und Betriebsverhalten**

C. M. Berger (2016), XV, 128 pp  
ISBN: 978-3-95806-154-5

Band / Volume 327

**Institute of Energy and Climate Research IEK-6: Nuclear Waste Management Report 2013 / 2014**

*Material Science for Nuclear Waste Management*  
S. Neumeier, M. Klinkenberg, D. Bosbach (Eds.)  
(2016), 219 pp  
ISBN: 978-3-95806-155-2

Band / Volume 328

**Conductivity and Structure of Sputtered ZnO:Al on Flat and Textured Substrates for Thin-Film Solar Cells**

N. Sommer (2016), vii, 195, XIV pp  
ISBN: 978-3-95806-156-9

Band / Volume 329

**Glaslotfügen von Festoxid-Brennstoffzellen durch Laseraufschmelzung**

M. Willberg (2016), 99 pp

ISBN: 978-3-95806-157-6

Band / Volume 330

**The Role of Natural Nanoparticles and Colloids for  
Phosphorus Binding in Forested Headwater Catchments**

N. Gottselig (2016), VIII, 116 pp

ISBN: 978-3-95806-160-6

Band / Volume 331

**Numerische Modellierung der thermomechanischen  
Fluid-Struktur-Interaktion im SOFC-Stack**

A. Al-Masri (2016), iii, 165 pp

ISBN: 978-3-95806-161-3

Band / Volume 332

**Analysis of biomixtures to determine the fate of pesticides**

S. Mukherjee (2016), xix, 136 pp

ISBN: 978-3-95806-163-7

Band / Volume 333

**Temperature Dependence of Carbon Kinetic Isotope Effect for  
The Oxidation Reaction of Ethane by Hydroxyl Radicals Under  
Atmospherically Relevant Conditions: Experimental and Theoretical  
Studies**

T. Piansawan (2016), 196 pp

ISBN: 978-3-95806-166-8

Band / Volume 334

**Konzeption von Membranmodulen zur effizienten Abtrennung  
von Kohlendioxid aus Gasgemischen**

S. Luhr (2016), VI, 231 pp

ISBN: 978-3-95806-170-5

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter  
<http://www.zb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>



**Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 334  
ISBN 978-3-95806-170-5**

