

Technische Universität München
TUM School of Engineering and Design

Der digitale Zwilling – Schlüsseltechnologie zur Flexibilisierung von Luftzerlegungsanlagen

Robert Jacob Kender

Vollständiger Abdruck der von der TUM School of Engineering and Design der Technischen Universität München zur Erlangung eines
Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)
genehmigten Dissertation.

Vorsitz: Prof. Dr. rer. nat. Sonja Berensmeier

Prüfer*innen der Dissertation:

1. Prof. Dr.-Ing. Harald Klein
2. Prof. Alexander Mitsos, Ph.D.

Die Dissertation wurde am 19.04.2023 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die TUM School of Engineering and Design am 05.07.2023 angenommen.

Teile der vorgelegten Dissertation sind in folgenden Publikationen erschienen:

Kender, R.; Wunderlich, B.; Thomas, I.; Peschel, A.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Pressure-Driven Dynamic Simulation of Distillation Columns in Air Separation Units*. Chemical Engineering Transactions 69 (2018), S. 271–276. DOI: 10.3303/CET1869046.

Kender, R.; Wunderlich, B.; Thomas, I.; Peschel, A.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Pressure-driven dynamic simulation of start up and shutdown procedures of distillation columns in air separation units*. Chemical Engineering Research and Design 147 (2019), S. 98–112. ISSN: 02638762. DOI: 10.1016/j.cherd.2019.04.031.

Kender, R.; Kaufmann, F.; Rößler, F.; Wunderlich, B.; Golubev, D.; Thomas, I.; Ecker, A.-M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Development of a digital twin for a flexible air separation unit using a pressure-driven simulation approach*. Computers & Chemical Engineering 151 (2021), S. 107349. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2021.107349.

Kender, R.; Rößler, F.; Wunderlich, B.; Pottmann, M.; Golubev, D.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Development of control strategies for an air separation unit with a divided wall column using a pressure-driven digital twin*. Chemical Engineering and Processing - Process Intensification 176 (2022), S. 108893. ISSN: 02552701. DOI: 10.1016/j.cep.2022.108893.

Kender, R.; Rößler, F.; Wunderlich, B.; Pottmann, M.; Thomas, I.; Ecker, A.-M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Improving the load flexibility of industrial air separation units using a pressure-driven digital twin*. AIChE Journal 68.7 (2022), e17692. DOI: 10.1002/aic.17692.

Rößler, F.; Freko, P.; Thomas, I.; Kender, R.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *A modular-hierarchical framework for the pressure-driven simulation of heat exchanger dynamics*. Computers & Chemical Engineering 163 (2022), S. 107821. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2022.107821.

Kender, R.; Stops, L.; Krespach, V.; Wunderlich, B.; Pottmann, M.; Ecker, A.-M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Reduced order modeling of a pressure column of an air separation unit using the Dynamic Edmister Method*. Computers & Chemical Engineering (2023), S. 108250. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2023.108250.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Zeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Anlagen- und Prozesstechnik der Technischen Universität München. In diesem Rahmen haben zahlreiche Personen zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Euch allen sage ich hiermit von ganzem Herzen: Danke!

Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Prof. Dr.-Ing. Harald Klein, der es mir ermöglicht hat, dieses Forschungsthema in Kooperation mit der Firma Linde zu bearbeiten und mich dabei stets hervorragend betreut hat. In diesem Zuge bedanke ich mich auch bei Dr.-Ing. Sebastian Rehfeldt, der durch konstruktive Ratschläge maßgeblich zum Erfolg meiner Arbeit beigetragen hat. Für die Übernahme des Zweitgutachtens bedanke ich mich bei Prof. Alexander Mitsos, Ph.D. und für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes bei Prof. Dr. rer. nat. Sonja Berensmeier.

Insbesondere möchte ich mich auch bei Dr.-Ing. Bernd Wunderlich bedanken, der mich seitens Linde betreut hat. Neben deinem wertvollen fachlichen Input und den zahlreichen Diskussionen bist du mir auch mit persönlichen Ratschlägen stets zur Seite gestanden. Bernd, vielen Dank für alles!

Ich möchte mich auch für die Unterstützung der Abteilung IT for Process Design and Control bedanken. Mein Dank gilt dabei Dr.-Ing. Andreas Kröner, der es mir ermöglicht hat, einen Großteil meiner Promotion bei ITP verbringen zu dürfen. Ausdrücklich möchte ich mich auch bei Dr. Ingo Thomas und Dr.-Ing. Martin Pottmann sowie allen weiteren Kolleginnen und Kollegen für die fachliche Unterstützung und die ergebnisreiche Zusammenarbeit bedanken.

Ein weiterer Dank gilt auch den Kolleginnen und Kollegen der Produktlinie AS bei Linde. Dabei möchte ich mich bei Lars Kirchner und Thomas Puchner bedanken, die mir tiefe Einblicke in die Auslegung und den Betrieb von Luftzerlegungsanlagen ermöglicht haben. Besonders danken möchte ich Dr.-Ing. Dimitri Goloubev, Florian Schliebitz und Stefan Lochner. Der Dank gilt an dieser Stelle auch allen anderen Kolleginnen und Kollegen der Abteilungen für den offenen Erfahrungsaustausch.

Ein großer Dank gilt auch Prof. Dr.-Ing. Andreas Peschel sowie Dr.-Ing. Anna-Maria Ecker für die hervorragende Projektleitung seitens Linde und die fachliche sowie persönliche Unterstützung.

Während meiner Zeit am Lehrstuhl herrschte durchweg ein tolles Arbeitsklima mit fachlichen und weniger fachlichen Diskussionen. Hierfür möchte ich allen Kolleginnen und Kollegen gleichermaßen danken. Mein besonderer Dank gilt dabei meinen Bürokollegen Dr.-Ing. Patrick Haider und Felix Rößler. Vielen Dank für die gemeinsame Zeit.

Zum Erfolg der Arbeit haben außerdem zahlreiche Studentinnen und Studenten mit ihren Studien- und Abschlussarbeiten beigetragen, bei denen ich mich hiermit herzlich bedanke.

Bei meinen Eltern bedanke ich mich für ihre bedingungslose Unterstützung auf meinem gesamten Bildungsweg. Ohne Euch wäre all dies nicht möglich gewesen.

Als Letztes möchte ich Dir, liebe Veronika, für die gemeinsame Zeit, deine liebevolle Unterstützung und den festen Rückhalt danken. Ich freue mich auf unseren weiteren gemeinsamen Weg und spannende Abenteuer in allen Lebenslagen.

München, Januar 2024

Robert Kender

Kurzfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Konzept eines digitalen Zwillings für eine verfahrenstechnische Anlage mit dem Fokus auf die kryogene Luftzerlegung entwickelt. Dazu wird dieser oftmals verwendete Begriff für eine verfahrenstechnische Anlage definiert und Ansprüche an das zugrunde liegende Simulationsmodell gestellt. Mit diesen Anforderungen werden in einer proprietären Softwareinfrastruktur der Firma Linde Anlagenmodelle entwickelt, die in der Lage sind, konzeptionell den gesamten Lebenszyklus abzubilden sowie Schnittstellen für die Kopplung mit dem physikalischen Zwilling besitzen, um einen bidirektionalen Datentransfer herstellen zu können. Der digitale Zwilling erlaubt es, sowohl das Anlagendesign als auch den Anlagenbetrieb kontinuierlich zu verbessern.

Beim zugrunde liegenden Simulationsmodell handelt es sich um ein virtuelles Abbild der Anlage, dessen Teilmodelle auf physikalischen Grundsätzen basieren. Durch das bei der Entwicklung berücksichtigte modular-hierarchische Modellierungsparadigma kann die Modellgranularität für unterschiedliche Simulationsaufgaben hinsichtlich Genauigkeit und Rechenzeitreduktion angepasst werden. In der vorliegenden Dissertation werden auf der Grundlage eines druckgetriebenen Simulationsansatzes hochdetaillierte dynamische Modelle der notwendigen Grundoperationen einer Luftzerlegungsanlage entwickelt, um den Betrieb einer Luftzerlegungsanlage realitätsgetreu abbilden zu können.

Es werden digitale Zwillinge für drei unterschiedliche Anlagentopologien implementiert. Die erste Anwendung trägt dazu bei, die Energieeffizienz der kryogenen Luftzerlegung weiter zu erhöhen. Dazu wird ein digitaler Zwilling einer neuartigen Anlagentopologie mit Trennwandkolonne entwickelt, um während der Designphase zu evaluieren, ob ein zuverlässiger Betrieb möglich ist. Dadurch werden gegenüber dem konventionellen Design erhebliche Einsparungen im Energieverbrauch erzielt.

In den beiden weiteren Fällen wird die Lastflexibilität der jeweils betrachteten Anlage untersucht. Dazu werden typische industriell eingesetzte Luftzerlegungsanlagen mit und ohne Argonproduktion betrachtet. Die Verwendung von digitalen Zwillingen erlaubt es, mittels in silico Studien den Anlagenbetrieb während Lastwechselvorgängen detailliert zu analysieren und Engpässe für einen flexiblen Betrieb zu identifizieren. Dadurch können Betriebskonzepte entwickelt werden, welche eine Erhöhung der Lastwechsellgeschwindigkeit erlauben und somit zur Verbesserung der Lastflexibilität beitragen. Darüber hinaus können relevante Extremszenarien, wie ein plötzlicher Anlagenstillstand und das darauffolgende Wiederauffahren aus dem kalten Anlagenzustand, untersucht werden, welche für einen optimalen Betrieb unter fluktuierenden Energiepreisen immer mehr an Bedeutung gewinnen.

Abstract

Within the scope of this thesis, a concept of a digital twin for process plants is developed with a focus on cryogenic air separation. Therefore, the frequently used term digital twin and the requirements for the underlying plant model are defined. Based on these criteria, simulation models are developed, which are conceptually designed to represent the entire plant life cycle. To this end, a Linde proprietary software infrastructure is used, which also inherently allows interfacing the digital twin with the real plant or a plant database to establish a bidirectional data transfer. The developed digital twins allow for continuous plant design and operation improvement.

The underlying simulation model is a virtual representation of the plant based on physical principles. Due to the modular-hierarchical modeling paradigm considered during development, the model granularity can be adapted for different simulation tasks in terms of accuracy and computational effort. As part of this dissertation, based on a pressure-driven simulation approach, highly detailed dynamic models of the required unit operations of an air separation unit are developed to realistically represent the operation of the plant.

Digital twins are implemented for three different air separation unit topologies. The first application contributes to further increasing the energy efficiency of the cryogenic air separation process. For this purpose, a digital twin of a novel plant topology with a dividing wall column is implemented. It is used during the plant design phase to evaluate whether reliable operation of the plant is possible. This allows for significant savings in energy consumption compared to a conventional design.

For the other two cases, an increase in load flexibility of the considered plants is investigated. Therefore, typical industrially used air separation units, with and without the additional production of argon, are considered. Using digital twins allows for in-depth analyses of transient load change procedures, thereby identifying bottlenecks for flexible operation using *in silico* studies. Based on these studies, operating concepts with increased load change rates can be developed, increasing the load flexibility of the plant. Furthermore, industrially relevant extreme scenarios such as a sudden plant shutdown and the subsequent cold re-start, which are becoming increasingly important for optimal operation under fluctuating energy prices, can be investigated without risk of production losses.

Inhaltsverzeichnis

Formelzeichen und Abkürzungen	XI
1 Einleitung	1
2 Motivation und Zielsetzung	3
3 Stand der Technik	5
3.1 Kryogene Luftzerlegung	5
3.2 Flexibilisierungsmaßnahmen für Luftzerlegungsanlagen	11
3.2.1 Energieoptimaler Betrieb von Luftzerlegungsanlagen – Demand-Side-Management	18
3.2.2 Anlagenbetrieb in einem volatilen Marktumfeld – Entwicklung von neuartigen Regelungskonzepten für den lastflexiblen Betrieb	26
3.2.3 Modellreduktion für Rektifikationskolonnen – Kompromiss zwischen Genauigkeit und Rechenzeit	29
3.3 Dynamische Simulation von Luftzerlegungsanlagen	31
3.4 Digitaler Zwilling – Digital Twin	34
4 Theoretische Grundlagen	37
4.1 Entwicklung und Definition des digitalen Zwillings	37
4.1.1 Anwendung des DT als Softsensor	41
4.1.2 Adaptives Anlagenmodell – die virtuelle ASU	43
4.2 Dynamische Simulation von verfahrenstechnischen Prozessen	45
4.2.1 Grundlagen des verwendeten Simulationsansatzes	45
4.2.2 Prozesssimulation mit druckgetriebener Strömung	47
4.3 Relevante verfahrenstechnische Grundoperationen	49
4.3.1 Pressure-Flow-Modelle	50
4.3.2 Rektifikationskolonnen	54
4.3.3 Wärmeübertrager	61
4.3.4 PI-Regler	63
5 Modellierung und Regularisierung	67
5.1 Modellierungsinfrastruktur – SMI@LE	67
5.2 Modellierung von Pressure-Flow-Zusammenhängen	70
5.3 Modellierung der Rektifikationskolonnen	74
5.3.1 Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz	75
5.3.2 Regularisierung der Siebbodenkorrelationen	76
5.4 Modellierung des Wärmeübertragers	81

6	Definition der Fallstudien, Simulationsergebnisse und Diskussion	85
6.1	Erhöhung der Energieeffizienz durch Prozessintensivierung	85
6.1.1	ASU-Topologie und Regelungskonzepte der Vergleichsstudie	87
6.1.2	Ergebnisse und Evaluation des Vergleichs der Regelungskonzepte für den Betrieb der IARC	93
6.1.3	Zusammenfassung und Fazit	108
6.2	Erhöhung der Lastflexibilität	109
6.2.1	ASU-Topologie und Herausforderungen des Ar-Systems	110
6.2.2	Innovatives Flüssigkeitsmanagement – Smart Liquid Management	117
6.2.3	Ergebnisse der Lastwechselanalysen	118
6.2.4	Zusammenfassung und Fazit	140
6.3	Anlagenstillstand und Anfahren aus dem kalten Anlagenzustand	141
6.3.1	ASU-Topologie	142
6.3.2	Ergebnisse der Studien der Extremszenarien	143
6.3.3	Zusammenfassung und Fazit	159
7	Zusammenfassung und Ausblick	161
A	Anhang	165
	Tabellenverzeichnis	167
	Abbildungsverzeichnis	168
	Literatur	173

Formelzeichen und Abkürzungen

Lateinische Formelzeichen

A_1	Primärfläche	m^2
A_2	Sekundärfläche	m^2
A_c	Querschnittsfläche einer Kolonne	m^2
A_{cs}	Querschnittsfläche einer Fluidpassage	m^2
A_{dc}	Querschnittsfläche eines Ablaufschachts	m^2
A_{eff}	effektive Wärmeübergangsfläche	m^2
A_{tray}	Querschnittsfläche eines Siebbodens	m^2
B	Regularisierungsparameter	
C	Widerstandsbeiwert	
C	Konstante für die Berechnung des Druckverlusts eines Siebbodens	
c	spezifische Wärmekapazität	$\frac{\text{J}}{\text{kg K}}$
c_p	isobare spezifische Wärmekapazität	$\frac{\text{J}}{\text{kg K}}$
d_c	Kolonnendurchmesser	m
d_h	hydraulischer Durchmesser	m
$e(t)$	Regelabweichung	
$e_s(t)$	Fehlersignal	
f	Funktion	
f_i	Fugazität der Komponente i	bar
F	Reibungsfaktor	
F_h	F-Faktor bezogen auf die perforierte Fläche des Bodens	$\sqrt{\text{Pa}}$
\dot{F}	Austretender Stoffmengenstrom der Flüssigphase	$\frac{\text{mol}}{\text{s}}$
g	Erdbeschleunigung	$\frac{\text{m}}{\text{s}^2}$
\dot{G}	Austretender Stoffmengenstrom der Gasphase	$\frac{\text{mol}}{\text{s}}$
h	spezifische Enthalpie	$\frac{\text{W}}{\text{kg}}$
h	flüssiger Holdup	$\frac{\text{m}^3}{\text{m}^3}$
h_{liq}	Höhe der klaren Flüssigkeit auf einem Siebboden	m

$h_{\text{liq,dc}}$	Höhe der klaren Flüssigkeit in einem Ablaufschacht	m
h_c	Höhe der klaren Flüssigkeit aufgrund des Strömungswiderstands des Einlaufspalts	m
h_W	Wehrhöhe	m
h_{oW}	Wehrüberlaufhöhe	m
h_{tray}^n	gesamter flüssiger Holdup des Siebbodens n	$\frac{\text{m}^3}{\text{m}^3}$
$h_{\text{tray}'}^n$	exklusiver flüssiger Holdup des Siebbodens n	$\frac{\text{m}^3}{\text{m}^3}$
h_{dc}^{n+1}	flüssiger des Ablaufschachts des Siebbodens $n + 1$	$\frac{\text{m}^3}{\text{m}^3}$
h_V	relativer Ventilhub	%
H_V	aktueller Ventilhub	%
H_{VS}	Nennhub	%
\dot{H}	Enthalpiestrom	W
J	Jacobi-Matrix	
k	konstanter Parameter	
$k_{c,\text{min}}$	kleinster Abstand zwischen der Oberkante des Eintrittsspalts und dem Einlaufwehr	m
K_i	Gleichgewichtswert Komponente i (Phasengleichgewicht)	
K_P	Verstärkungsfaktor	
K_V	Durchflussfaktor	$\frac{\text{m}^3}{\text{h}}$
K_{VS}	maximaler Durchflussfaktor	$\frac{\text{m}^3}{\text{h}}$
l_w	Wehrlänge	m
L	Füllstand	%
\dot{M}	Mengenstrom	$\frac{\text{kg}}{\text{s}}$
\bar{M}	molare Masse	$\frac{\text{kg}}{\text{mol}}$
n_{theo}	theoretische Trennstufenanzahl	
n_{real}	reale Trennstufenanzahl	
N	Stoffmenge	mol
\dot{N}	Stoffmengenstrom	$\frac{\text{mol}}{\text{s}}$
p	Druck	bar
Δp	Druckunterschied	bar
Δp_{acc}	Druckverlust durch Beschleunigung	bar
Δp_{dry}	trockener Druckverlust	bar

Δp_{fric}	Reibungsdruckverlust	bar
p_i	Partialdruck der Komponente i	bar
Δp_{liq}	Druckverlust aufgrund der Höhe der klaren Flüssigkeit	bar
Δp_{tray}	Druckverlust eines Siebbodens	bar
P_{mech}	mechanische Leistung	W
Q	Wärmemenge	J
\dot{Q}	Wärmestrom	W
r	Eingangsgrößen	
R	Widerstandsbeiwert	
s	spezifische Entropie	$\frac{\text{J}}{\text{kg K}}$
S_i	S-Faktor Komponente i (Phasengleichgewicht)	
t	Zeit	s
t_{fin}	Dicke der Finstruktur	m
T	Temperatur	K
ΔT	Temperaturdifferenz	K
T_{N}	Nachstellzeit	s
T_{T}	Zeitkonstante	s
$u(t)$	Stellgröße	
U	innere Energie	J
v	Transportgeschwindigkeit	$\frac{\text{m}}{\text{s}}$
$v_{\text{vap,h}}$	Gasgeschwindigkeit bezogen auf die perforierte Fläche	$\frac{\text{m}}{\text{s}}$
V_{geo}	geometrisches Volumen	m^3
V_{td}	thermodynamisches Volumen	m^3
\dot{V}	Volumenstrom	$\frac{\text{m}^3}{\text{h}}$
\dot{V}_{N}	Volumenstrom bei Normbedingungen	$\frac{\text{m}_{\text{N}}^3}{\text{h}}$
$w(t)$	Führungsgröße	
x_i	Stoffmengenanteil der Komponente i der Flüssigphase	
x_{a}	algebraische Zustandsgröße	
x_{d}	differentielle Zustandsgröße	
X	Konstante für die Berechnung des flüssigen Holdups eines Siebbodens	

y_i	Stoffmengenanteil der Komponente i der Gasphase	
$y(t)$	Regelgröße	
Y	Konstante für die Regularisierung des flüssigen Holdups eines Siebbodens	
Z	Höhenkoordinate	m
$z(t)$	Störgröße	

Griechische Formelzeichen

α	Wärmeübergangskoeffizient	$\frac{\text{W}}{\text{m}^2 \text{K}}$
ε	Breite des Regularisierungsintervalls	
ε_{liq}	relativer Anteil der Flüssigkeit in der Zweiphasenschicht	
η_{fin}	Fineffizienz	
η_{isen}	isentropen Wirkungsgrad	
η_{Mu}	Murphree-Wirkungsgrad	
η_{pump}	Pumpenwirkungsgrad	
λ	Homotopieparameter	
λ_s	Wärmeleitfähigkeit des Metalls	$\frac{\text{W}}{\text{m K}}$
ϱ	Dichte	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$
ϱ_{N}	Dichte bei Normbedingungen	$\frac{\text{kg}}{\text{m}_{\text{N}}^3}$
τ	Reibungsspannung	$\frac{\text{N}}{\text{m}^2}$
φ_i	Fugazitätskoeffizient der Komponente i	

Hochgestellte Indizes

*	Gleichgewichtszustand
id	idealisiert
n	Neigung der gleichprozentigen Ventilkennlinie
N	normiert
s	isentropen Zustandsänderung

Tiefgestellte Indices

0	bezogen auf einen Referenzzustand
1	bezogen auf Druckknoten 1
2	bezogen auf Druckknoten 2
α	durch konvektiven Wärmeübergang

des	bezogen auf den Auslegungsfall
i	Element/Prozessstrom i
in	am Eintritt
j	Volumenelement j
lim	auf einen Bereich begrenzt
lin	linearisiert
liq	in der Flüssigphase
max	maximal
min	minimal
n	Iterationschritt/theoretische Trennstufe n
out	am Austritt
reg	regularisiert
s	Metallwärmekapazität s
top	am Kopf der Kolonne
vap	in der Gasphase
ζ	Widerstandsbeiwert

Dimensionslose Kennzahlen

J	Colburn-Zahl
Pr	Prandtl-Zahl
Re	Reynolds-Zahl

Abkürzungen

AC	Analysenregelung, engl.: <i>analysis control</i>
ANN	künstliche neuronale Netze, engl.: <i>artificial neuronal networks</i>
APC	verbesserte Prozessführung, engl.: <i>advanced process control</i>
APCS	verbessertes Prozessführungssystem, engl.: <i>advanced process control system</i>
ASU	Luftzerlegungsanlage, engl.: <i>air separation unit</i>
ATM	Abgas zur Atmosphäre, engl.: <i>vent to atmosphere</i>
ARC	Argon-Abtrennungskolonnen, engl.: <i>argon removal column</i>
BAC	Booster-Luftverdichter, engl.: <i>booster air compressor</i>
BDF	Rückwärtsdifferenzenverfahren, engl.: <i>backward differentiation formula</i>
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
CAC	Rohargonkolonne, engl.: <i>crude argon column</i>
CARC	konventionelle Argon-Abtrennungskolonnen, engl.: <i>conventional argon removal column</i>
CAES	Druckluft-Energiespeicher, engl.: <i>compressed air energy storage</i>
CGN	unreiner gasförmiger Stickstoff, engl.: <i>crude gaseous nitrogen</i>
CGAR	unreines gasförmiges Argon, engl.: <i>crude gaseous argon</i>

CGO	unreiner gasförmiger Sauerstoff, engl.: <i>crude gaseous oxygen</i>
CLOP	unreiner flüssiger Drucksauerstoff, engl.: <i>crude liquid oxygen pressurized</i>
CLO	unreiner flüssiger Sauerstoff, engl.: <i>crude liquid oxygen</i>
CRS	Ersatzmodell des Betriebszustands mit konvexen Hüllen, engl.: <i>convex region surrogat</i>
DAE	differentiell-algebraische Gleichung, engl.: <i>differential-algebraic equation</i>
DCAC	Direktkontakt-Luftkühler, engl.: <i>direct contact air cooler</i>
DEM	Dynamic Edmister Method
DSM	Demand-Side-Management
DR	marktorientiert, engl.: <i>demand response</i>
DT	digitaler Zwilling, engl.: <i>digital twin</i>
DWC	Trennwandkolonne, engl.: <i>divided wall column</i>
EE	Energieeffizienz, engl.: <i>energy efficiency</i>
EEG	Erneuerbare-Energien-Gesetz
eNMPC	ökonomische nichtlineare modellprädiktive Regelung, engl.: <i>econommic nonlinear model predicitive control</i>
EVC	Verdampfungskühler, engl.: <i>evaporation cooler</i>
FC	Durchflussregelung, engl.: <i>flow control</i>
FFC	Zwangsdurchlauf-Verdampfer/Kondensator, engl.: <i>forced-flow condenser/reboiler</i>
FOPTD	erste Ordnung mit Zeitverzögerung, engl.: <i>first order plus time delay</i>
GAN	gasförmiger Stickstoff, engl.: <i>gaseous nitrogen</i>
GAP	gasförmige Druckluft, engl.: <i>gaseous air pressurized</i>
GANIC	innenverdichteter gasförmiger Stickstoff, engl.: <i>gaseous nitrogen internally compressed</i>
GMPS®	<i>General Multiphase Property System®</i>
GOX	gasförmiger Sauerstoff, engl.: <i>gaseous oxygen</i>
GOXIC	innenverdichteter gasförmiger Sauerstoff, engl.: <i>gaseous oxygen internally compressed</i>
HETP	Höhenäquivalent einer theoretischen Trennstufe, engl.: <i>height equivalent to one theoretical plate</i>
HPC	Hochdruckkolonne, engl.: <i>high pressure column</i>
IAE	Integral des absoluten Fehlers, engl.: <i>integral of the absolute value of the error</i>
IARC	integrierte Argon-Abtrennungskolonnen, engl.: <i>integrated argon removal column</i>
ISE	Integral des quadrierten Fehlers, engl.: <i>integral of the squared error</i>
ITAE	Integral des zeitlich gewichteten absoluten Fehlers, engl.: <i>integral of the time-weighted absolute error</i>
KPI	Leistungskennzahl, engl.: <i>key performance indicator</i>
LAR	flüssiges Argon, engl.: <i>liquid argon</i>
LAIR	flüssige Luft, engl.: <i>liquid air</i>
LC	Füllstandsregelung, engl.: <i>level control</i>
LIN	flüssiger Stickstoff, engl.: <i>liquid nitrogen</i>

LMPC	lineare modellprädiktive Regelung, engl.: <i>linear model predicitive control</i>
LOX	flüssiger Sauerstoff, engl.: <i>liquid oxygen</i>
LPC	Niederdruckkolonne, engl.: <i>low-pressure column</i>
MAC	Hauptluftverdichter, engl.: <i>main air compressor</i>
MC	Hauptkondensator, engl.: <i>main condenser</i>
MHEX	Hauptwärmeübertrager, engl.: <i>main heat exchanger</i>
MIDO	gemischt-ganzzahliges dynamisches Optimierungsproblem, engl.: <i>mixed integer dynamic optimization</i>
MILP	gemischt-ganzzahlige lineare Programmierung, engl.: <i>mixed integer linear programming</i>
MINLP	gemischt-ganzzahlige nichtlineare Programmierung, engl.: <i>mixed integer non-linear programming</i>
MPC	modellprädiktive Regelung, engl.: <i>model predictive control</i>
NASA	<i>National Aeronautics and Space Administration</i>
NLM	kein-Flüssigkeitsmanagement, engl.: <i>no liquid management</i>
NWT	nichtlineare Wellenverbreitungstheorie, engl.: <i>nonlinear wave propagation theory</i>
NMPC	nichtlineare modellprädiktive Regelung, engl.: <i>nonlinear model predicitive control</i>
ODE	gewöhnliche Differentialgleichung, engl.: <i>ordinary differential equation</i>
OPEX	Betriebskosten, engl.: <i>operating expenditures</i>
OTS	Trainingssimulator, engl.: <i>operator training system</i>
PAC	Reinargonkolonne, engl.: <i>pure argon column</i>
PC	Druckregelung, engl.: <i>pressure control</i>
PDC	Differenzdruckregelung, engl.: <i>pressure difference control</i>
PFHE	Plattenwärmeübertrager, engl.: <i>plate-fin heat exchanger</i>
PGAN	gasförmiger Druckstickstoff, engl.: <i>pressurized gaseous nitrogen</i>
PI	Proportional-Integral
SBM	Zeitskalenüberbrückungsmodell, engl.: <i>scale bridging model</i>
SC	Unterkühlerkreuzgegenströmer, engl.: <i>subcooler</i>
SCR	Nebenkondensator, engl.: <i>side condenser/reboiler</i>
SIMC	Skogestad Internal Model Control
SLM	innovatives Flüssigkeitsmanagement, engl.: <i>smart liquid management</i>
SMI@LE	<i>Simulation Model Infrastructure @ Linde Engineering</i>
SP	Sollwert, engl.: <i>setpoint</i>
StromEinspG	Stromeinspeisungsgesetz
TC	Temperaturregelung, engl.: <i>temperature control</i>
TWPM	transientes Wellenverbreitungsmodell, engl.: <i>transient wave propagation model</i>
VDI	Verein Deutscher Ingenieure e.V.
VLE	Gas-Flüssig-Gleichgewicht, engl.: <i>vapor-liquid-equilibrium</i>
WGAN	gasförmiger Stickstoff, der an die Atmosphäre abgeblasen wird, engl.: <i>waste gaseous nitrogen</i>

1 Einleitung

Die globale Erwärmung ist eine der größten weltweiten Herausforderungen der heutigen Zeit. Das Ausmaß und die Ernsthaftigkeit dieser Krise werden durch das Pariser Klimaabkommen unterstrichen, in dem sich 197 Staats- und Regierungschefs darauf einigen, eine gemeinsame Antwort auf den Klimawandel zu geben. Das Hauptaugenmerk liegt auf der Begrenzung der jährlichen Erderwärmung auf unter 2°C, idealerweise auf 1.5°C [UNFCCC 2015]. Eine Maßnahme, um die damit verbundene Reduktion von Treibhausgasen zu verwirklichen, ist die Ablösung von fossilen Energieträgern durch erneuerbare Energien [RAFTERY ET AL. 2017]. Daher befinden sich weltweit verschiedene Länder mitten in einer Energiewende mit dem Fokus, die Abhängigkeit der immer knapper werdenden fossilen Brennstoffe zu lösen, den Schadstoffausstoß zu reduzieren und eine ökologisch nachhaltige Zukunft zu ermöglichen [BICHLER ET AL. 2022].

Beginnend mit dem Stromeinspeisungsgesetz (StromEinspG), welches 1990 beschlossen und zum 1. Januar 1991 in Kraft getreten ist, hat die Bundesrepublik Deutschland zum ersten Mal in ihrer Geschichte Elektrizitätsversorgungsunternehmen dazu verpflichtet, Energie aus erneuerbaren Quellen von Dritten abzunehmen und zu vergüten. Damit wurde der Grundstein für den Ausbau von erneuerbaren Energiequellen in Deutschland gelegt [BMWK 2022]. Das StromEinspG wurde im Jahr 2000 vom Erneuerbare-Energien-Gesetz (EEG) abgelöst. Das EEG ist ein Eckpfeiler der Energiewende mit dem Ziel, den Anteil an erneuerbaren Energien in Deutschland stetig auszubauen, um dadurch den Ausstoß von Schadstoffen fossiler Brennstoffe kontinuierlich zu reduzieren. Das EEG definiert dabei gewisse Zielvorgaben oder Zeitpunkte, beispielsweise für den Kohleausstieg. In der aktuellsten Ausgabe des EEG von 2021 wird dabei das konkrete Ziel definiert, den Anteil an erneuerbaren Energien an der Stromversorgung bis 2050 auf 60 % auszubauen. In Deutschland wird dabei verstärkt auf den Ausbau von Windenergie an Land und See sowie Solarenergie gesetzt. [BMWl 2020]

Der steigende Anteil an erneuerbaren Energien bringt jedoch Herausforderungen mit sich, da diese meist nur dezentral mit einer hohen Volatilität in ihrer Verfügbarkeit erzeugt werden können. Daher gilt es den Energieverbrauch an die fluktuierende Verfügbarkeit der erneuerbaren Energien anzupassen. Entsprechend der Energieverfügbarkeit sollen v.a. industrielle Großabnehmer mit Hilfe des sog. Demand-Side-Management (DSM) ihren Stromverbrauch flexibel steuern, um somit kritische Schwankungen im Stromnetz zu verhindern. [SAUER ET AL. 2019]

Kryogene Luftzerlegungsanlagen, engl.: *air separation units* (ASUs), eignen sich besonders für DSM, da diese Anlagen aufgrund ihres hohen Energiebedarfs und ihrer Möglichkeit, Energie in Form von kryogenen Flüssigkeiten effizient speichern zu können,

ein großes Potential zur Netzstabilisierung aufweisen. Besonders wird dies am jährlichen Energiebedarf der von der Firma *Linde* betriebenen ASUs in Deutschland deutlich. Dieser liegt in etwa bei 4 TWh, was in etwa 1 % des gesamten elektrischen Energieverbrauchs in Deutschland entspricht [LOCHNER 29.04.2021]. Durch die bisherige Möglichkeit einer relativ konstanten Strom- und Wärmeerzeugung mittels fossiler Brennstoffe sind ASUs auf einen stationären Betrieb ausgelegt und optimiert. Um nun die Betriebsweise an die volatile Verfügbarkeit von Solar- oder Windenergie anzupassen, müssen neue Betriebs- und Regelungsstrategien entwickelt werden und die Auslegung kritischer Anlagenkomponenten auf die dadurch entstehenden wechselnden Belastungen überprüft und angepasst werden. [KLEIN ET AL. 2020]

Dabei handelt es sich im Allgemeinen um das Potential, den Energiebedarf einer ASU in einem bestimmten Zeitraum um einen geforderten Betrag zu variieren, ohne dabei die gestellten Anforderungen an die Produktion zu verletzen. Im Detail ist dies jedoch eine vielschichtige Herausforderung, die für den Betrieb von bestehenden oder das Design von neuen Anlagen unterschiedliche Maßnahmen erfordert. Eine Schlüsseltechnologie zur Lastflexibilisierung von ASUs sind digitale Zwillinge, engl.: *digital twins* (DTs). Diese erlauben das Anlagenverhalten während Lastwechsellvorgängen durch in silico Studien im Detail zu analysieren, um so Randbedingungen und Limitierungen für einen lastflexiblen Betrieb zu definieren, ohne dabei in den Realbetrieb eingreifen zu müssen. Darüber hinaus können extreme Lastwechselszenarien, wie Anfahr- oder Abschaltvorgänge, mit Hilfe von Simulationsstudien genau untersucht werden, um den potentiellen Lastbereich einer flexibel betriebenen ASU zu erweitern. Auf der einen Seite können anhand dieser Simulationsstudien betriebstechnische oder strukturelle Maßnahmen für Bestandsanlagen ermittelt werden, um einen lastflexiblen Betrieb effizient und rentabel zu ermöglichen. Auf der anderen Seite können daraus Anforderungen an das Design von neuen ASUs gestellt werden, um eine bessere Anpassung des Betriebs an die Verfügbarkeit von erneuerbaren Energien zu ermöglichen. [KENDER ET AL. 2021a]

Die nachfolgende Arbeit ist im Rahmen des vom Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) geförderten *Kopernikus*-Projekts *SynErgie FlexASU* entstanden und beinhaltet die Entwicklung eines Konzepts für DTs von verfahrenstechnischen Produktionsanlagen mit dem Fokus auf den Prozess der kryogenen Luftzerlegung. Im Folgenden werden Zielsetzung und Motivation der Arbeit genauer ausgeführt.

2 Motivation und Zielsetzung

Die Anpassung der Betriebsweise verfahrenstechnischer Produktionsanlagen von einem weitgehend stationären hin zu einem lastflexiblen Betrieb, welcher an die Verfügbarkeit von Solar- und Windenergie angepasst ist, erfordert fundiertes Wissen über das dynamische Verhalten der Anlage. Darüber hinaus sind Informationen über die Randbedingungen und Limitierungen für die Anzahl und Änderungsrate von Lastwechseln notwendig.

Für ASUs ist ein lastflexibler Betrieb besonders herausfordernd, da diese Anlagen aufgrund ihrer Energieeffizienz einen hohen Grad an Prozess- und Wärmeintegration aufweisen. Dadurch können sich bei Lastwechselvorgängen einer ASU bereits geringfügige Veränderungen einer einzelnen Prozessgröße maßgeblich auf den gesamten Anlagenzustand auswirken. Darüber hinaus handelt es sich hierbei meist um nichtlineare Zusammenhänge zwischen den einzelnen Prozessgrößen, was eine Vorhersage des Anlagenverhaltens weiter erschwert.

Die bisherige Betriebsweise von industriell eingesetzten ASUs ist darauf ausgelegt, die Anlagen möglichst konstant an ihrem optimalen Betriebspunkt zu betreiben. Die Annahmen für notwendige Lastverschiebungen der Anlagen basieren größtenteils auf den langjährigen Erfahrungswerten von Anlagenbetreiberinnen und Anlagenbetreibern sowie Automatisierungsingenieurinnen und Automatisierungsingenieuren. Weiter sind bestehende Anlagen lediglich mit einer begrenzten Anzahl an Messstellen ausgestattet, die für den Betrieb der jeweiligen ASU zwingend notwendig sind. Dies erschwert eine detaillierte Analyse des dynamischen Verhaltens einer ASU und führt zu konservativen Annahmen bei Lastwechselraten, um sicherzustellen, dass die an die Anlage gestellten Produktionsanforderungen zu jedem Zeitpunkt erfüllt werden können. Darüber hinaus sind bestehende ASUs für einen begrenzten Lastbereich ausgelegt, in dem diese betrieben werden. Für diesen Bereich sind computergestützte Methoden bereits vorhanden, die es über vereinfachende Annahmen ermöglichen, automatisierte Lastwechselvorgänge durchzuführen. Für einen lastflexiblen Betrieb einer ASU soll jedoch der gesamte Lastbereich effektiv genutzt werden. Dabei gewinnen Extremszenarien wie spontane Anlagenstopps und das (Wieder-) Anfahren zunehmend an Bedeutung. Hierfür muss mittels Simulationswerkzeugen der gesamte Betriebsbereich einer ASU untersucht werden. Dies ermöglicht die Identifikation von Engpässen für bestehende Betriebsstrategien sowie deren gezielte Verbesserung.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung von Simulationsmodellen, die in der Lage sind, den Betrieb von ASUs mit einer sehr hohen Genauigkeit darzustellen, um mittels in silico Studien fundiertes Wissen über das Anlagenverhalten während Lastwechselvorgängen aufzubauen. Daraus lassen sich Handlungsempfehlungen für einen lastflexiblen Betrieb

von Bestands- sowie Empfehlungen für die Berücksichtigung einer flexiblen Betriebsweise im Design von Neuanlagen ableiten.

Die Grundlage dafür ist ein druckgetriebener Simulationsansatz, bei dem sich die durch die Anlage fließenden Stoffströme entsprechend der vorliegenden Druckgradienten einstellen. Dabei werden als Randbedingungen die Drücke der ein- und austretenden Stoffströme vorgegeben. Im Gegensatz dazu werden bei einem konventionellen Ansatz die Stoffströme (Durchflussmenge) durch die betrachtete Anlage vorgegeben (strömungsgetriebene Simulation). Analog zur Realität können bei einem druckgetriebenen Ansatz Simulationsmodelle als Drucknetzwerk interpretiert werden. Darüber hinaus handelt es sich bei ASUs um hochgradig energieoptimale Anlagen. Daher ist für eine Betriebsanalyse der höchstmögliche Detailgrad der Simulationsmodelle notwendig. Für die Modellierung der Kernbestandteile einer ASU: dem Hauptwärmeübertrager, engl.: *main heat exchanger* (MHEX), und den Rektifikationskolonnen wird aus diesem Grund bei der Berechnung von Wärmeübergangskoeffizienten (MHEX) sowie Druckverlust und Holdup in den Kolonnen auf Auslegungskorrelationen zurückgegriffen. Die Einzelmodelle können zu unterschiedlichen ASU-Topologien kombiniert werden. Für jeden gewünschten Anlagentyp kann somit ein druckgetriebenes dynamisches Anlagenmodell mit höchster Modellgranularität erstellt werden, die sog. *virtuelle ASU*.

Mit der virtuellen ASU als Basis wird ein DT-Konzept entwickelt, welches neben den Simulationsmodellen eine geeignete Infrastruktur enthält, die es ermöglicht, die virtuelle ASU an die entsprechende Realanlage zu koppeln. Somit wird ein bidirektionaler Datentransfer ermöglicht, der es erlaubt, Simulationsdaten zu verwenden, um den Anlagenbetrieb und das -design zu optimieren sowie Anlagendaten zu verwenden, um die verwendeten Simulationsmodelle stetig verbessern zu können. Dadurch wird sichergestellt, dass mit Hilfe der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modelle entsprechende Flexibilisierungsmaßnahmen für industriell eingesetzte ASUs abgeleitet und genutzt werden können. Darüber hinaus soll eine nachhaltige Nutzung der Modelle gewährleistet werden, um konzeptionell einen Mehrwert über den gesamten Lebenszyklus von ASUs zu generieren. Das allgemeine Konzept des DT ist auf verfahrenstechnische Anlagen übertragbar. Das zugrunde liegende Simulationsmodell entspricht dem virtuellen Abbild des betrachteten Prozesses mit adaptiver Modellgranularität. Die dazu notwendigen Teilmodelle müssen dafür, falls notwendig, individuell angepasst oder neu entwickelt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit werden DTs für unterschiedliche ASU-Topologien entwickelt. Das erste Anwendungsbeispiel ist die Verwendung eines DT für eine Machbarkeitsstudie hinsichtlich des zuverlässigen Betriebs einer neuartigen, energieeffizienten ASU-Topologie, welche eine Trennwandkolonne beinhaltet. Weiter werden mit Hilfe eines DT Lastwechselszenarien systematisch analysiert und Handlungsempfehlungen für eine Erhöhung der Lastwechselrate abgegeben. Als Letztes wird ein DT dazu genutzt, den gesamten Lastbereich einer ASU abzubilden, inklusive Extremszenarien wie spontanen Anlagenstopps und dem (Wieder-) Anfahren.

3 Stand der Technik

Durch die Herausforderungen der Energiewende rückt der flexible Betrieb von verfahrenstechnischen Produktionsanlagen verstärkt in den Fokus. Diese Problemstellung ist jedoch schon seit Jahrzehnten Bestandteil der Forschung. Bereits RUDD & WATSON (1968) befassen sich mit der Fragestellung der optimalen Betriebsanpassung eines Elektrolyseurs für eine Ammoniumnitratanlage an die variable Stromverfügbarkeit. Da der Fokus in dieser Arbeit jedoch auf der Lastflexibilisierung von ASUs liegt, werden im Folgenden zunächst die Grundlagen der kryogenen Luftzerlegung erläutert. Weiter werden grundlegende Maßnahmen zur Erhöhung der Lastflexibilität dieser Anlagen vorgestellt. Anschließend folgt eine Zusammenstellung über bestehende Arbeiten, die sich mit dem flexiblen Anlagenbetrieb sowie der dynamischen Simulation von ASUs beschäftigen. Als Letztes wird ein Überblick über die Entwicklung und Definition des DT gegeben.

3.1 Kryogene Luftzerlegung

Bei der Luftzerlegung wird Luft aus der Umgebung in ihre einzelnen Bestandteile getrennt. Dabei handelt es sich um ein Gemisch aus einer Vielzahl an verschiedenen Molekülen. Die Zusammensetzung für trockene, gereinigte Luft ist weltweit relativ ähnlich. Die Hauptbestandteile, die 99.962 mol % ausmachen, sind dabei Stickstoff (N_2), Argon (Ar) und Sauerstoff (O_2). Die molare Zusammensetzung von trockener, gereinigter Luft inkl. der Siedepunkte der jeweiligen Komponenten ist in Tabelle 3.1 zusammengefasst. [MOLL 2014]

Wie in Tabelle 3.1 zu erkennen ist, kann eine Trennung der Luftkomponenten aufgrund ihrer Siedepunkte nur bei tiefkalten Temperaturen erfolgen. Die Grundlage für die kryogene Luftzerlegung ist auf die kontinuierliche Verflüssigung von Luft durch *Carl von Linde* im Jahre 1895 zurückzuführen. Umgebungsluft wird hier zunächst auf einen Druck von 200 bar verdichtet. Danach wird diese auf Umgebungsdruck entspannt. In diesem Druckbereich kommt es ausgehend von Umgebungstemperatur pro Druckminderung von 1 bar durchschnittlich zu einer Abkühlung der Luft von 0.25 K (Joule-Thomson-Effekt). Die tatsächliche Abkühlung kann vom Durchschnittswert aufgrund der Druck- und Temperaturabhängigkeit des Joule-Thomson-Effekts variieren. Da dieser Effekt beim Stoffgemisch Luft mit sinkender Temperatur verstärkt wird, kann durch die Verwendung eines Gegenstromwärmeübertragers die kalte Luft dazu verwendet werden, die warme Feedluft vor der Entspannung bereits vorzukühlen. Dadurch können Temperaturen unterhalb des Taupunkts von Luft erreicht werden. Allerdings konnte mit diesem

Tabelle 3.1: Darstellung der molaren Zusammensetzung von trockener, gereinigter Luft und der Siedepunkte (⁽¹⁾ Gefrierpunkte) der Komponenten bei $p = 1.013$ bar nach MOLL (2014)

Hauptkomponenten			
Name		Anteil in %	Siedepunkt in °C
Stickstoff	N ₂	78.08	-195.85
Sauerstoff	O ₂	20.95	-182.95
Argon	Ar	0.932	-185.85
Spurenkomponenten			
Name		Anteil in ppm	Siedepunkt in °C
Kohlenstoffdioxid	CO ₂	380	-78.45 ⁽¹⁾
Neon	Ne	18.2	-246.15
Helium	He	5.2	-268.95
Krypton	Kr	1.138	-153.35
Wasserstoff	H ₂	0.5	-252.75
Lachgas	N ₂ O	0.31	-88.45
Kohlenstoffmonoxid	CO	0.1	-191.55
Xenon	Xe	0.086	-108.05

Vorgehen lediglich eine Sauerstoffreinheit von etwa 70 % erreicht werden. [HAUSEN & LINDE 1985]

Die Basis für die kryogene Luftzerlegung, wie sie heute im industriellen Maßstab eingesetzt wird, ist der im Jahre 1908 ebenfalls von Carl von Linde entwickelte *Linde Prozess*, dessen Herzstück die sog. *Linde Doppelkolonne* ist. Dabei handelt es sich um zwei durch einen Verdampfer/Kondensator thermisch gekoppelte Rektifikationskolonnen bei unterschiedlichen Druckniveaus [VON LINDE 1908]. Die kryogene Luftzerlegung deckt heute mehr als 90 % des weltweiten N₂- und O₂-Bedarfs. Alternativ können Luftgase mittels Druckwechseladsorption oder Membranverfahren gewonnen werden. Diese beiden Verfahren sind jedoch nur dann rentabel, wenn die Reinheitsanforderungen sowie die geforderten Mengen an N₂ oder O₂ gering sind [MOLL 2014].

Abbildung 3.1 zeigt eine typische ASU der Firma Linde. Aufgrund der notwendigen kryogenen Temperaturen für die Trennung der Komponenten befinden sich die Rektifikationskolonnen in einer mit Perlit gefüllten *Coldbox*, um die Wärmeverluste an die Umgebung zu minimieren. Ebenso ist der MHEX, welcher den eintretenden warmen Luftstrom gegen die tiefkalten Produktströme auf kryogene Temperaturen kühlt, mit einer Coldbox umgeben.

Für eine detaillierte Darstellung des Prozesses der kryogenen Luftzerlegung ist in Abbildung 3.2 ein typisches Verfahrensfießbild einer ASU analog zu MOLL (2014) dargestellt. Die Hauptprodukte der dargestellten ASU sind gasförmiger Stickstoff, engl.: *gaseous nitrogen* (GAN), gasförmiger Sauerstoff, engl.: *gaseous oxygen* (GOX),

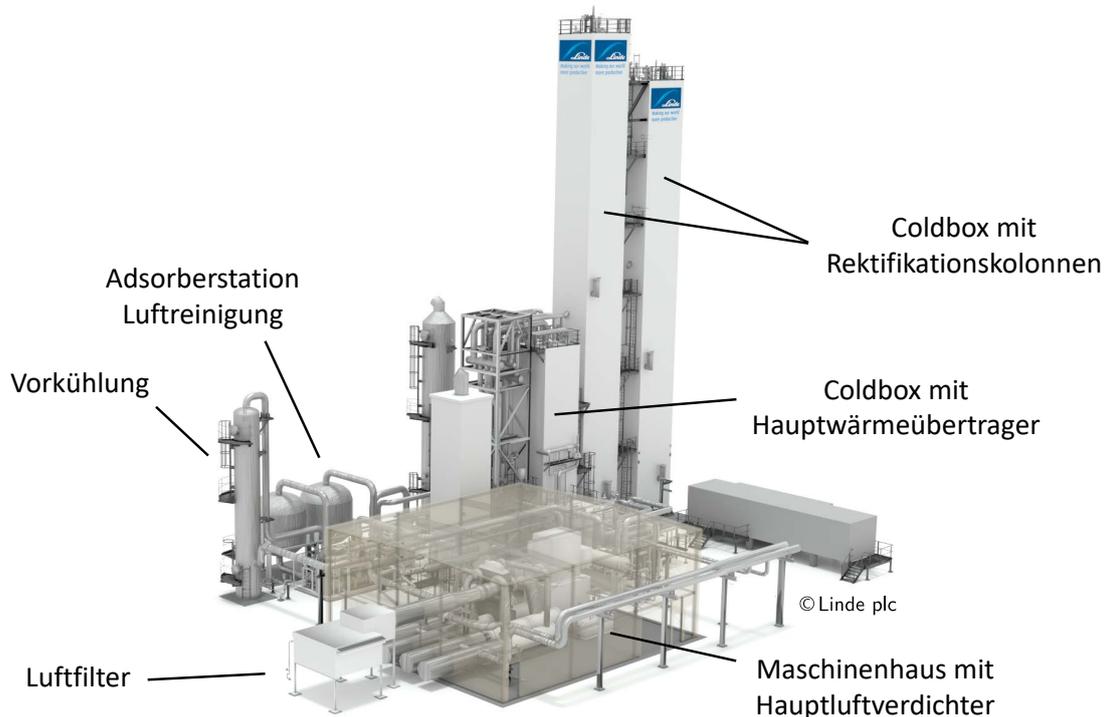


Abbildung 3.1: Darstellung einer typischen ASU der Firma Linde inkl. Hauptbestandteile nach KENDER ET AL. (2021b)

und flüssiges Argon, engl.: *liquid argon* (LAR). Darüber hinaus wird eine kleine Menge gasförmiger Druckstickstoff, engl.: *pressurized gaseous nitrogen* (PGAN), zur Verwendung als Instrumentengas sowie flüssiger Sauerstoff, engl.: *liquid oxygen* (LOX), als Spülstrom abgezogen. Der LOX-Strom wird abgezogen, um aus Sicherheitsgründen eine zu starke Anreicherung an O_2 sowie die Spuren an Kohlenwasserstoffen, die nicht vollständig in der Luftreinigung (Prozessblock ©) adsorbiert werden, in der Anlage zu verhindern. Das restliche Gas wird an verschiedenen Stellen (Prozessblöcke © und ⓖ) als Abgas zur Atmosphäre, engl.: *vent to atmosphere* (ATM), abgeblasen.

Die in Abbildung 3.1 hervorgehobenen Hauptbestandteile sind im dargestellten Verfahrensfließbild unter den Prozessblöcken (a) - (g) wiederzufinden. Im Block (a) wird die Umgebungsluft durch einen Luftfilter angesaugt und im Hauptluftverdichter ① auf ein Druckniveau von etwa 6 bar verdichtet. Nachfolgend wird in (b), der Vorkühlung, die Luft im Direktkontakt-Luftkühler, engl.: *direct contact air cooler* (DCAC), ② auf etwa 10°C gekühlt. Das dafür notwendige Kühlwasser wird vom Verdampfungskühler, engl.: *evaporation cooler* (EVC), ③ bereitgestellt. Neben der Kühlung des Luftstroms dient der DCAC auch dazu, die Luftfeuchtigkeit zu reduzieren und Spuren von Sauer gasen wie Cl_2 , HCl , NO_2 und SO_2 sowie NH_3 zu entfernen. Die vorgekühlte Luft wird im Prozessblock (c) in einen Molsiebadsorber ④ geführt, um die restliche Feuchtigkeit sowie weitere Luftverunreinigungen wie z.B. CO_2 oder Kohlenwasserstoffe zu entfernen, die bei kryogenen Temperaturen ausfrieren. Im Luftreinigungsteil © werden zwei parallel

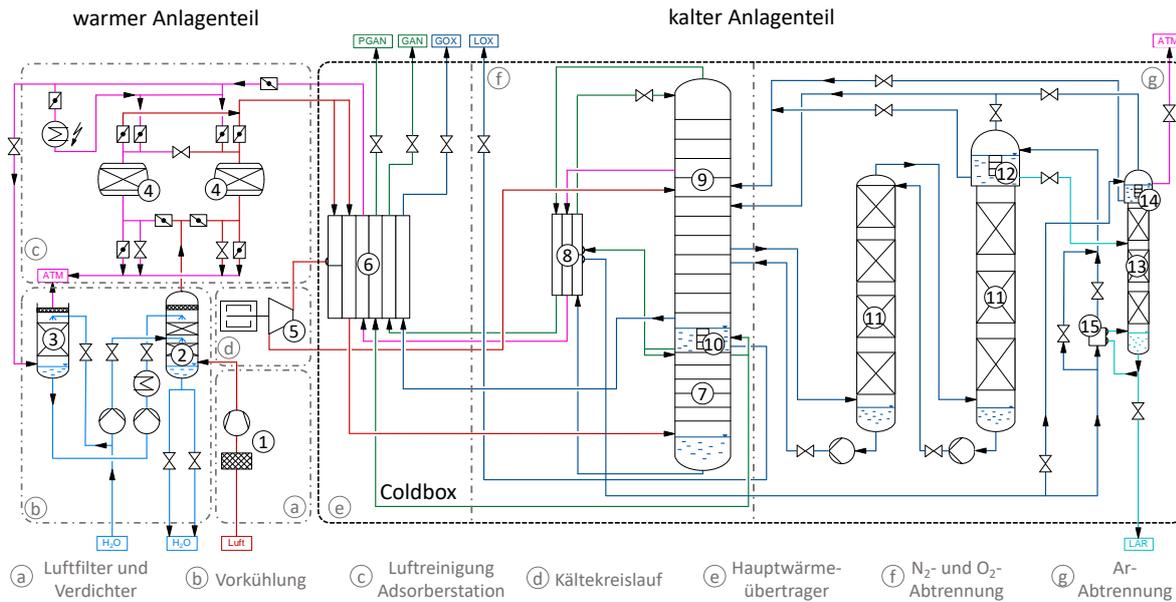


Abbildung 3.2: Darstellung eines Verfahrensfließbilds einer ASU analog zu MOLL (2014)

geschaltete Adsorber zyklisch betrieben. In einem Zyklus wird jeweils ein Adsorber für die Reinigung der Luft verwendet, wohingegen der andere mittels ATM-Strom regeneriert wird, bevor der ATM-Strom an die Umgebung abgeblasen wird. Die Prozessblöcke (a) - (c) repräsentieren den *warmen Anlagenteil*, da hier Temperaturen über dem Taupunkt von Luft bei atmosphärischem Druck herrschen.

Die vorbehandelte Luft tritt dann in den *kalten Anlagenteil* ein, bei dem die jeweiligen Apparate von Coldboxen umgeben sind. Im MHEX (6) wird der Großteil des Luftstroms, der Hauptluftstrom, über die gesamte Länge gegen die tiefkalten Produktströme gekühlt und auf Temperaturen um den Taupunkt von Luft beim entsprechenden Druckniveau gebracht. Der kleinere Luftstrom, der Turbinenstrom, welcher in etwa 10 % des gesamten Luftstroms entspricht, tritt ebenfalls in den MHEX ein. Jedoch wird dieser lediglich über eine Teillänge abgekühlt und danach im Block (d) in einer Expansionsturbine (5) entspannt. Durch die Entspannung des Turbinenstroms werden die Wärmeverluste der Wärmeübertrager und die Isolationsverluste von der Umgebung ausgeglichen. Zusätzlich wird durch den Kältekreislauf die notwendige Kälteleistung für die Produktion von flüssigem Ar bereitgestellt. Abhängig von den gewonnenen Produkten der betrachteten ASU gibt es unterschiedliche Konfigurationen für den Kältekreislauf. Für diese Arbeit ist neben der in Abbildung 3.2 dargestellten Expansionsturbine noch eine weitere Konfiguration relevant, die eine Innenverdichtung der Produkte ermöglicht. Dabei werden die gewünschten Produkte als Flüssigkeiten aus den Trennkolonnen abgezogen und im kalten Teil der ASU bereits auf den gewünschten Produktdruck verdichtet. Diese werden dann im MHEX verdampft und als gasförmige Produkte aus der ASU gewonnen. Eine genauere Beschreibung dieser Konfiguration ist beim entsprechenden Beispiel in Abschnitt 6.1 genauer beschrieben.

Beide Luftströme werden dann im Prozessblock (f) den unterschiedlichen Kolonnen der Linde Doppelkolonne zugeführt. Der Hauptluftstrom wird über dem Sumpf der Hochdruckkolonne, engl.: *high pressure column* (HPC), (7) eingespeist, wohingegen der Turbinenstrom dem oberen Teil der Niederdruckkolonne, engl.: *low-pressure column* (LPC), (9) zugeführt wird. Die Linde Doppelkolonne besteht neben den beiden Kolonnen noch aus einem Verdampfer/Kondensator auch Hauptkondensator, engl.: *main condenser* (MC), (10) genannt. Dieser koppelt beide Kolonnen thermisch. Durch die Kondensation des hochreinen N_2 am Kopf der HPC bei einem Druckniveau von etwa 5 - 6 bar wird die Flüssigkeit auf der Verdampferseite in der LPC, bestehend aus hochreinem O_2 , verdampft. Die LPC wird dabei in einem Druckbereich von 1.2 - 1.6 bar betrieben. Für beide Kolonnen können sowohl Siebböden als auch strukturierte Packungen verwendet werden. In der in Abbildung 3.2 dargestellten ASU-Topologie sind beide in Siebbodenkonfiguration mit Bodenzahlen von jeweils $n_{HPC} \approx 50$ und $n_{LPC} \approx 100$ ausgeführt, was typischen Werten entspricht [KENDER ET AL. 2021a]. Der im MC kondensierte N_2 wird als Rücklauf für beide Kolonnen verwendet. Im Sumpf der HPC reichert sich eine O_2 -reiche Flüssigkeit an. Diese wird als flüssiges Feed für die LPC verwendet. Bevor die beiden Flüssigkeiten in die LPC gespeist werden, werden sie im Unterkühlerkreuzgegenströmer, engl.: *subcooler* (SC), (8) weiter unterkühlt. Sowohl für den SC als auch für den MHEX werden größtenteils Plattenwärmeübertrager, engl.: *plate-fin heat exchanger* (PFHE), verwendet. Mit Hilfe der Linde Doppelkolonne lassen sich zwei der drei Hauptbestandteile der Luft, N_2 und O_2 , in hochreiner Form gewinnen. Für die Abtrennung von Ar sind zusätzliche Rektifikationskolonnen notwendig, die im Prozessblock (g) dargestellt sind.

Wird Luft als Dreistoffgemisch der Hauptkomponenten betrachtet, so ist N_2 der Leicht-, O_2 der Schwer- und Ar der Mittelsieder. Abbildung 3.3 zeigt die Dampfdruckkurven der Komponenten.

Es ist zu erkennen, dass die Differenz der Siedepunkte zwischen dem Mittelsieder Ar und dem Schwersieder O_2 vergleichsweise gering ist, was die Komplexität und den Aufwand für die destillative Gewinnung von hochreinem Ar erhöht. Wie in Abbildung 3.2 im Prozessblock (g) dargestellt, werden hierfür zwei zusätzliche Trennkolonnen, die Rohargonkolonne, engl.: *crude argon column* (CAC), (11) und die Reinargonkolonne, engl.: *pure argon column* (PAC), (13), benötigt. Darüber hinaus werden zwei weitere Verdampfer/Kondensatoren am Kopf der jeweiligen Kolonnen (Rohargon-Verdampfer/Kondensator (12), Reinargon-Verdampfer/Kondensator (14) und ein zusätzlicher Verdampfer (15), welcher den Sumpf der PAC beheizt, benötigt, was den Grad der Wärmeintegration der ASU weiter erhöht.

Wie an der Verteilung der Siedepunkte in Abbildung 3.3 zu erkennen ist, besteht die Herausforderung bei der Gewinnung von Ar darin, O_2 abzutrennen. Dazu wird im unteren Teil der LPC ein gasförmiges Gemisch aus größtenteils O_2 , einem vergleichsweise hohen Anteil an Ar und Spuren von N_2 abgezogen und über dem Sumpf der CAC eingespeist. Sowohl bei der CAC als auch bei der PAC handelt es sich um Packungskolonnen mit Hochleistungspackungen. Für die Trennung von O_2 aus dem Ar-Feed ist

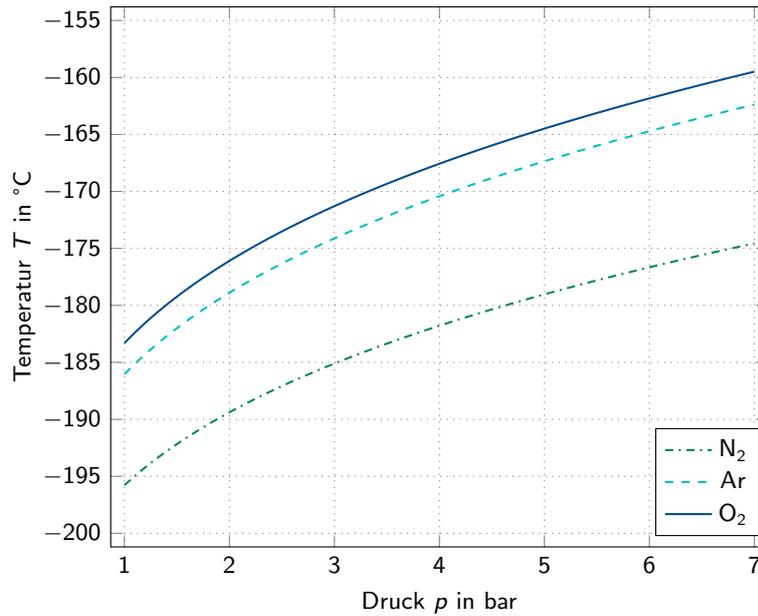


Abbildung 3.3: Darstellung der Dampfdruckkurven der Hauptkomponenten von Luft: N₂, Ar und O₂

in etwa eine Anzahl an theoretischen Böden von $n_{CAC} \approx 200$ notwendig [MOLL 2014]. In Abbildung 3.2 ist die CAC aufgrund von Höhenlimitierungen der Coldbox in zwei Kolonnen geteilt. Der Rücklauf der Flüssigkeiten wird dabei durch Pumpen gewährleistet. In der PAC werden die N₂-Spuren aus dem gasförmigen Rohargon entfernt, welches am Kopf der CAC abgezogen wird und lediglich einen O₂-Anteil im ppm Bereich enthält. Dazu wird in der PAC eine theoretische Bodenanzahl von etwa $n_{PAC} \approx 50$ realisiert.

Wie auch für den Kältekreislauf (d) gibt es auch für die Prozessblöcke (e) und (f) unterschiedliche Ausführungen. In industriellen ASUs wird bei der Mehrheit der von der Firma Linde betriebenen Anlagen (in etwa $\frac{2}{3}$) die Abtrennung von Ar berücksichtigt. Neben der Gewinnung von hochreinem Ar als Wertprodukt ist es für die Energieeffizienz einer ASU von Vorteil, wenn der Mittelsiederanteil in der LPC reduziert wird. Bei ASUs mit großen Produktionskapazitäten an O₂ gibt es die Möglichkeit, eine Argon-Abtrennungskolonnen, engl.: *argon removal column* (ARC), anzubringen, auch wenn die Gewinnung von Ar als Wertprodukt und die damit einhergehende Komplexität nicht gewünscht ist.

Im Rahmen dieser Arbeit sind neben der in Abbildung 3.2 dargestellten Topologie noch zwei weitere Topologien relevant. In Abschnitt 6.1 wird eine ASU mit integrierter Argon-Abtrennungskolonnen, engl.: *integrated argon removal column* (IARC), betrachtet, wohingegen im Abschnitt 6.3 eine ASU analysiert wird, die nur N₂ und O₂ herstellt. Die in Abbildung 3.2 dargestellte ASU wird in Abschnitt 6.2 als Grundlage für die durchgeführten Studien verwendet. Notwendige Details zu den verwendeten Anlagentopologien werden im jeweiligen Abschnitt ausführlich dargestellt. Weitere Erläuterungen zum Prozess der kryogenen Luftzerlegung sowie unterschiedliche Ausführungen des Kältekreislaufs (d) und der Trennung in die Produkte (f) und (g), optimiert für die

jeweiligen Produktspektren, können u.a. HAUSEN & LINDE (1985), HÄRING (2008) oder MOLL (2014) entnommen werden.

3.2 Flexibilisierungsmaßnahmen für Luftzerlegungsanlagen

Die Hauptenergieverbraucher einer ASU sind der Hauptluft- sowie weitere mögliche Nachverdichter, deren Anzahl abhängig vom Kältekreislauf und des Produktspektrums der betrachteten Anlage ist. Die Last des Verdichters kann in vergleichsweise geringen Zeitskalen angepasst werden, was in der Theorie auch sehr kurzfristige Anpassungen des Energieverbrauchs einer ASU an die Stromverfügbarkeit erlaubt. Jedoch hat eine Veränderung der dem Hauptluftverdichter zugeführten Energiemenge direkten Einfluss auf den Austrittsdruck des Verdichters und somit auf die Luftmenge, welche der ASU zugeführt wird, was weitreichende Auswirkungen auf die Produktmengen und Reinheiten hat. Darüber hinaus liefert das in der Anlage verwendete Equipment Vorgaben für u.a. den Lastbereich, in dem die ASU energieeffizient betrieben werden kann oder auch Randbedingungen für die Anzahl an potentiellen Lastwechsellvorgängen ohne mechanische Schäden an Bauteilen zu verursachen. Um unter der Berücksichtigung der gegebenen Anforderungen und Randbedingungen eine energieoptimale Betriebsplanung gewährleisten zu können, wird DSM angewendet.

Eine grundlegende Voraussetzung für das DSM ist jedoch die Möglichkeit, bei einem fluktuierenden Energiepreis den Energiebedarf der Anlage, möglichst unabhängig des aktuellen Kundenbedarfs an Produkt, zu variieren. Zu diesem Zweck können bei einer ASU z.B. zusätzliche Flüssigproduktspeicher angebracht werden, um bei einer Reduktion der Anlagenlast durch Zugabe von flüssigem Produkt aus dem Speicher die fehlende Produktmenge zu kompensieren. In Abbildung 3.4 ist dieses Prinzip schematisch dargestellt.

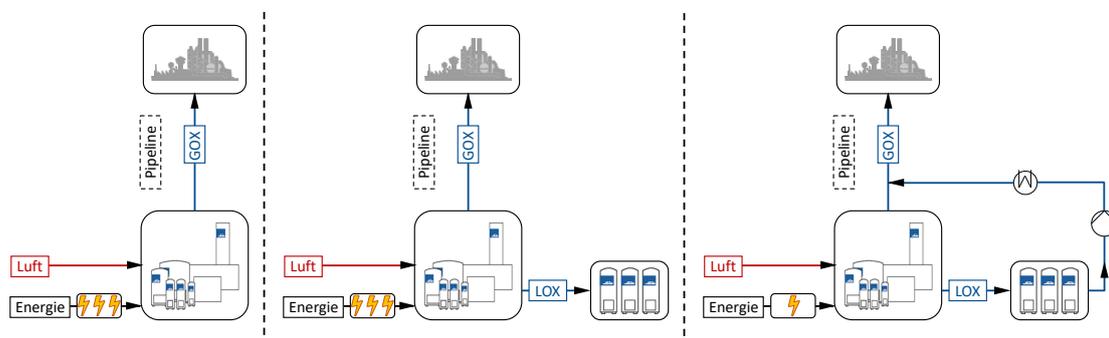


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Flexibilisierung einer ASU nach WUNDERLICH (2018)

In dem Beispiel wird eine ASU betrachtet, welche GOX über eine Pipeline an einen nachgeschalteten Prozess (z.B. Raffinerie oder Stahlwerk) abgibt (linker Fall). In den

in der Mitte und rechts dargestellten Fällen werden zusätzlich Speicherkapazitäten für LOX angebracht. Dies erlaubt im mittleren Fall, bei einem günstigen Strompreis, neben dem geforderten GOX die restliche Kapazität der Anlage zu nutzen, um die LOX-Tanks zu befüllen. Im rechten Fall kann bei einem hohen Strompreis die Produktionsmenge der ASU entsprechend reduziert und durch die Einspeisung des gespeicherten Flüssigproduktes in die Pipeline dennoch die aktuell geforderte Menge an GOX an die Raffinerie oder das Stahlwerk abgegeben werden. Die Last der ASU kann somit im Idealfall unabhängig der geforderten Produktmenge angepasst werden. Im hier dargestellten Fall kann für jedes aus dem Tank zugeführte Sauerstoffmolekül in etwa die fünffache Menge an Luft am Hauptluftverdichter reduziert werden [HÄRING 2008]. Der LOX-Tank dient somit als indirekter Energiespeicher.

Bei der in Abbildung 3.4 dargestellten Speichertechnologie handelt es sich um die Variante mit der geringsten Wärmeintegration und daher maximalen Energieverlusten. Aus diesem Grund werden neben der Speicherung des LOX-Produkts weitere Speichermöglichkeiten bei einer ASU untersucht. In Abbildung 3.5 sind die gängigen Möglichkeiten der Energiespeicherung dargestellt.

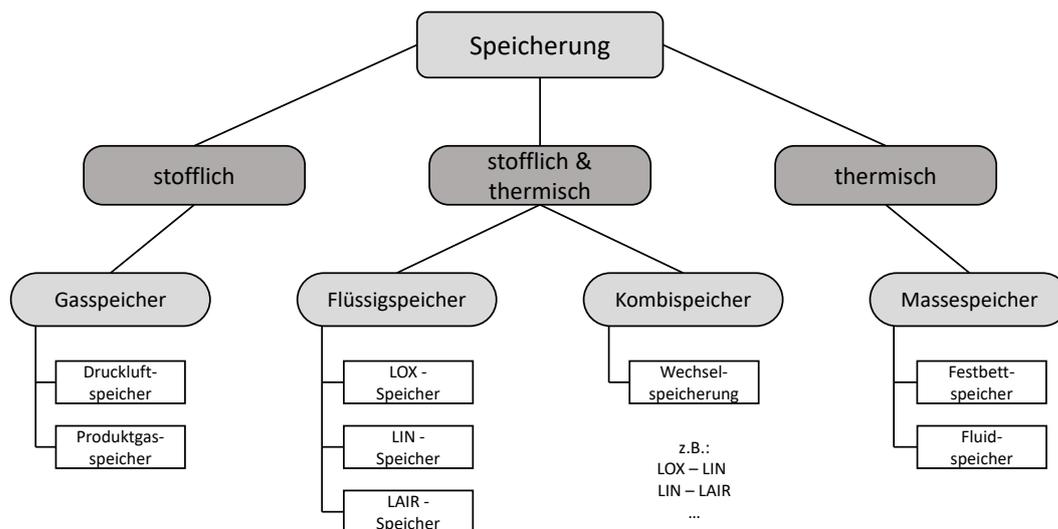


Abbildung 3.5: Technologien zur Energiespeicherung in einer ASU nach WUNDERLICH ET AL. (2015)

In einer ASU kann Energie entweder stofflich, thermisch oder als Kombination von beiden temporär gespeichert werden. Unter die Kategorie stoffliche Speicher fallen Gasspeicher, die entweder edukt- oder produktseitig angebracht werden können. Auf der Eduktseite kann hierfür ein Druckluft-Energiespeicher, engl.: *compressed air energy storage* (CAES), [BARNES & LEVINE 2011] verwendet werden, was einem Kavernenspeicher entspricht [AUSFELDER ET AL. 2015]. Auf der Produktseite werden üblicherweise Gaspufferbehälter für die Produkte GAN und GOX verwendet, um auf fluktuierende Produkthanforderungen von (Gas-) Kunden reagieren zu können [DARYANIAN ET AL. 1989].

Eine weitere Möglichkeit ist die thermische Speicherung, bei der eine zusätzliche Speichermasse in den bestehenden Prozess integriert wird. Dabei kann es sich einerseits

um Festbettkältespeicher handeln, die durch einen kryogenen Produktstrom abgekühlt werden. Diese auch *Regeneratoren* genannte Speichertechnologie ist seit mehreren Jahrzehnten in der Kälte- und Kryotechnik verbreitet [WINDMEIER & BARRON 2010]. Andererseits kann in einem Fluidspeicher z.B. die Energie aus Phasenwechselfvorgängen genutzt werden, um die thermische Energie aus den entsprechenden Fluidströmen zu speichern [WUNDERLICH 2018].

Die für DSM relevanteste Speichertechnologie ist jedoch die Kombination aus stofflicher und thermischer Speicherung mittels kryogener Flüssigkeiten. Analog zur Gasspeichertechnologie können hier sowohl Edukt- als auch Produktströme gespeichert werden. Bei der Speicherung von kryogenen Flüssigkeiten kann bei der Wiederverwendung sowohl der thermische Energieinhalt als auch die Stoffmenge zurückgewonnen werden. Das Produktspektrum der betrachteten Anlage entscheidet, welche Art des flüssigen Produktspeichers idealerweise verwendet werden kann. Dabei kann entweder die Speicherung von flüssigem Stickstoff, engl.: *liquid nitrogen* (LIN), LOX oder einer Kombination aus beiden Produkten (Kombispeicher) realisiert werden. Die Zwischenspeicherung von flüssiger Luft, engl.: *liquid air* (LAIR), ermöglicht eine temporäre Erhöhung der Luftmenge und verhindert eine Überdimensionierung der Luftverdichter. Die Verwendung von Kombispeicher ist für einen lastflexiblen Betrieb besonders interessant, da durch eine antizyklische Verwendung der Speicher der größtmögliche Einfluss auf die Kältebilanz der ASU genommen werden kann. [WUNDERLICH 2018]

Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Speichertechnologien sowie der Randbedingungen und Anforderungen an die Lastflexibilität sind in Abbildung 3.6 die unterschiedlichen Aspekte des DSM einschließlich der benötigten Simulationsmodelle dargestellt und werden nachfolgend ausführlich beschrieben.

Randbedingungen des DSM In Abbildung 3.6 sind die Randbedingungen des DSM einer ASU dargestellt, welche im Allgemeinen auf deren Flexibilitätspotential zurückzuführen sind. Generell kann DSM dazu genutzt werden, die Betriebsplanung einer Bestandsanlage unter gegebenen Einschränkungen hinsichtlich Energieverfügbarkeit zu optimieren. Außerdem können dadurch Anforderungen an die Lastflexibilität einer neuen ASU gestellt werden, um das bestmögliche Design für einen energieoptimalen Betrieb zu garantieren. Für eine Bestandsanlage können die Randbedingungen für das DSM in die zwei Kategorien Betriebsstrategie und Equipmentdesign unterteilt werden.

Ausgehend von einer Bestandsanlage sind die Randbedingungen für das DSM in Abbildung 3.6 von links nach rechts durch gestrichelte Pfeile gekennzeichnet. Die wichtigsten Bestandteile, die das Flexibilitätspotential der ASU maßgeblich bestimmen, sind die Rektifikationskolonnen, der MHEX und die verwendeten Luftverdichter. Neben den in der Anlage verbauten Komponenten ist die Speichermöglichkeit von kryogenen Fluiden ein ausschlaggebender Faktor für einen lastflexiblen Anlagenbetrieb. Durch die Verwendung der entsprechenden Speichertechnologie (siehe Abbildung 3.4) wird die Abhängigkeit zwischen geforderter und tatsächlich produzierter Produktmenge reduziert.

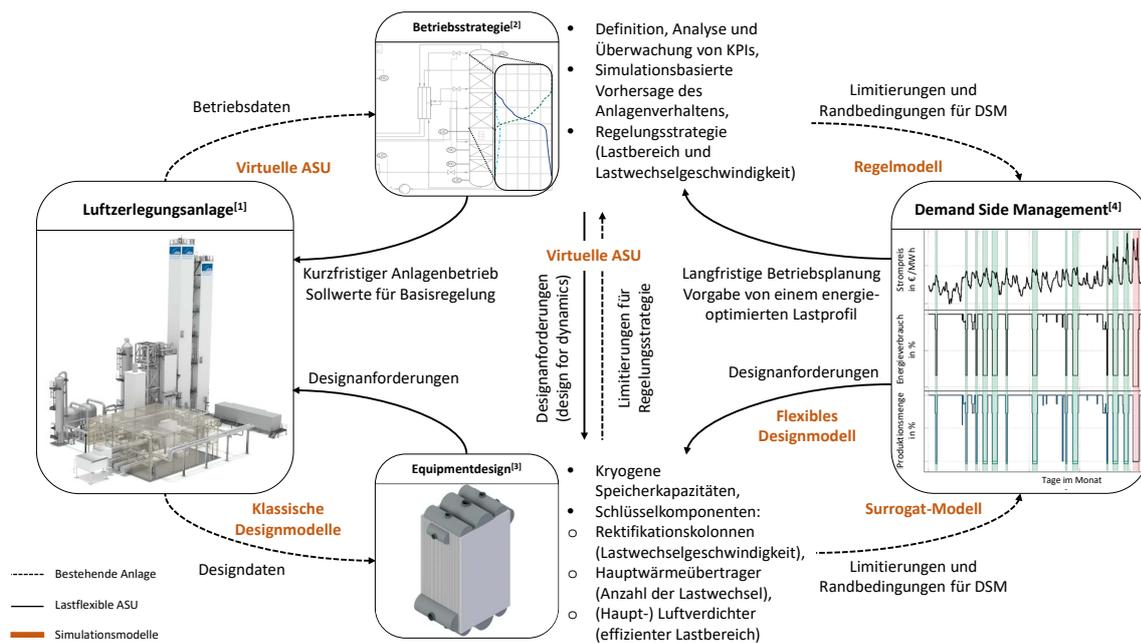


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Randbedingungen, der Anforderungen an die Lastflexibilität sowie der benötigten Simulationsmodelle für die unterschiedlichen Aspekte des DSM, [1] aus KENDER ET AL. (2021b), [2] aus KENDER ET AL. (2021a), [3] aus HAIDER ET AL. (2021) und [4] aus OBERMEIER ET AL. (2019)

Bezüglich des Anlagenequipments ist der effiziente Lastbereich der Luftverdichter ein limitierender Faktor für die Größenordnung von potentiellen Lastveränderungen. Außerhalb dieses Bereiches kann der Wirkungsgrad der Verdichter so weit abfallen, dass ein energieeffizienter Betrieb der ASU nicht mehr möglich und das Betreiben der Anlage in diesem Lastbereich nicht erstrebenswert ist. Eine weitere Limitierung für einen lastflexiblen Betrieb einer ASU ist die Auswirkung dieser Betriebsweise auf die strukturelle Integrität der Bauteile. Mit einer erhöhten Anzahl an Lastwechsellvorgängen, Abschalt- und Wiederanfahrvorgängen steigt u.a. die Belastung der Behälter aufgrund von häufigen Druckwechseln. Ausschlaggebend ist jedoch der MHEX, dessen erhöhte thermische Belastung die Anzahl an potentiellen Lastverschiebungen einer ASU limitiert.

Die verwendeten Rektifikationskolonnen sind limitierend für die Lastwechselgeschwindigkeit, mit der die Anlagenlast verändert werden kann. Dabei handelt es sich sowohl um Randbedingungen für das DSM als auch für die Betriebsstrategie der Anlage. Abhängig vom Kolonnentyp und den entsprechenden Einbauten, wie Flüssigkeitsverteiler oder Sammler, beinhalten diese eine unterschiedliche Menge an flüssigem Holdup, was Auswirkungen auf die temporären Veränderungen des Konzentrationsprofils während eines Lastwechsellvorgangs hat und somit eine Randbedingung für die maximale Lastwechselgeschwindigkeit darstellt. Darüber hinaus ist die Speichermöglichkeit des flüssigen

Holdups für extreme Lastwechselfvorgänge, wie einem Wiederanfahrvorgang nach einem Anlagenstopp, hinsichtlich der Wiederanfahrzeiten von Bedeutung.

Generell liefert eine Bestandsanlage Betriebsdaten, die im Rahmen der Betriebsstrategie dazu verwendet werden können, wichtige Leistungskennzahlen, engl.: *key performance indicators* (KPIs), zu überwachen und den Betrieb ggf. anzupassen. Dabei handelt es sich beispielsweise um Kennzahlen auf Basis von Produktreinheiten oder den Energieverbrauch der Anlage, deren Einhaltung Randbedingungen an die Lastwechselgeschwindigkeit stellt. Weiter ist ein wichtiger Teil der Betriebsstrategie die Möglichkeit, den Anlagenbetrieb generell und v.a. die transienten Lastwechselfvorgänge mittels dynamischer Simulation darstellen zu können. Sowohl die Betriebsdaten als auch die dynamische Simulation können genutzt werden, um im Rahmen von verbesserter Prozessführung, engl.: *advanced process control* (APC), komplexe Regelungsstrategien zu entwickeln, die auf modellprädiktive Regelung, engl.: *model predictive control* (MPC), basieren. Diese erlauben innerhalb der Einschränkungen des verwendeten Equipments für einen gegebenen Lastbereich die maximal mögliche Lastwechselgeschwindigkeit unter Einhaltung der Anforderungen an die KPIs zu gewährleisten.

Anforderungen an die Lastflexibilität einer ASU Beginnend mit dem DSM sind in Abbildung 3.6 von rechts nach links die Anforderungen an die Lastflexibilität einer ASU mit durchgezogenen Pfeilen gekennzeichnet, die für ein ökonomisch optimales Zusammenspiel aus energieoptimalem Betrieb und zuverlässiger Erfüllung des Produktbedarfs erforderlich sind. Bezogen auf das Equipmentdesign können ausgehend von potentiellen Produktabnahmeprofilen und Energiepreisen Anforderungen an die kryogenen Speicherkapazitäten, die Anzahl an benötigten Lastwechseln sowie Lastbereich und Lastwechselgeschwindigkeit gestellt werden, die eine ASU in einem definierten Zeitraum ermöglichen soll. Gleiches gilt für die Betriebsstrategie. Hier gibt das DSM eine langfristige Betriebsplanung vor, welche durch die Verwendung von geeigneten Strategien und Methoden im Rahmen von APC Vorgaben für den Anlagenbetrieb stellen und dabei die bestmögliche Einhaltung von KPIs garantieren. Das wiederum stellt Anforderungen an das Equipmentdesign, welches z.B. im Rahmen einer APC-Strategie die vom DSM geforderten Lastwechselraten ermöglichen soll. Darüber hinaus können durch die Untersuchung von Lastwechselfvorgängen mittels Simulationsstudien auch designtechnische Limitierungen identifiziert werden, die weitere Anforderungen an das Equipmentdesign stellen (engl.: *design for dynamics*).

Für die Erhöhung der Lastflexibilität von ASUs bedarf es somit der Betrachtung und Entwicklung von Möglichkeiten zur optimalen **Speicherung** von kryogenen Fluiden, der **Vergrößerung des effizienten Lastbereichs** der Luftverdichter und Maßnahmen zur Robustifizierung des MHEX für eine **Erhöhung der Lastwechselanzahl**. Darüber hinaus werden neuartigen Betriebskonzepte benötigt, welche die neuen Anforderungen an den Betrieb von ASUs möglichst effizient umsetzen und es erlauben, die entsprechenden Anlagen mit einer gegenüber dem Status quo **erhöhten Lastwechselgeschwindigkeit** zu betreiben.

Ein wichtiger Bestandteil bei der Ableitung von Flexibilisierungsmaßnahmen ist es, durch die Entwicklung von hochdetaillierten Anlagenmodellen (siehe Abbildung 3.6 virtuelle ASU) den Einfluss des Equipments einer ASU auf den Anlagenbetrieb bestmöglich in Simulationsstudien abbilden zu können. Das Hauptaugenmerk der Modellentwicklung liegt auf den Rektifikationskolonnen, da deren Vorhersagegenauigkeit die Ergebnisse des Gesamtanlagenmodells maßgeblich beeinflusst. Mit Hilfe der virtuellen ASU können die Anforderungen an und die Randbedingungen für den Anlagenbetrieb durch in silico Studien realitätsgetreu untersucht werden, ohne dabei in den Betrieb einer Bestandsanlage eingreifen zu müssen. Die virtuelle ASU ermöglicht es, eine Brücke zwischen dem Potential sowie den Limitierungen des Schlüsselequipments und der optimalen Betriebsstrategie der gesamten ASU für den flexiblen Betrieb zu schlagen. Daher ist die Entwicklung der virtuellen ASU ein zentraler Bestandteil dieser Dissertation. Eine detaillierte Betrachtung der Schlüsselkomponenten MHEX und Luftverdichter geht über den Rahmen dieser Arbeit hinaus. Daher wird auf diese im weiteren Verlauf nicht genauer eingegangen.

Äußere Einflüsse Neben den durch die ASU vorgegebenen Randbedingungen für das DSM, abgebildet in Abbildung 3.6, gibt es äußere Vorgaben für einen energieoptimalen Betrieb. Diese sind in Abbildung 3.7 dargestellt. Dabei handelt es sich um die Energieverfügbarkeit, den damit verbundenen Preis am Energiemarkt sowie die jeweiligen Anforderungen des Kunden und somit das Abnahmeprofil der betrachteten ASU. Diese haben keinen direkten Einfluss auf die Lastflexibilität der Anlage, definieren jedoch die Anforderungen hinsichtlich Anzahl, Größenordnung und Geschwindigkeit der benötigten Lastveränderungen. Mit Hilfe des DSM soll ein ökonomisch optimales Zusammenspiel aus energieoptimalem Betrieb und zuverlässiger Erfüllung des Produktbedarfs ermöglicht werden.

Die Güte der Betriebsplanung mittels DSM hängt dabei stark von der verfügbaren Datenlage der äußeren Einflüsse ab. Da ASUs oftmals in Raffinerie-Komplexen oder als Zulieferer für Stahlwerke eingesetzt werden, ist die Vorhersage von Abnahmeprofilen meist abhängig von Drittkunden und deren Betriebsplanung. Bezüglich des Einflusses des Energiemarkts ist die Bestimmung des Energiepreises an sich bereits komplex, da dieser nicht nur von der Verfügbarkeit, sondern auch vom gewählten Strommarkt, an dem die Energie bezogen wird, abhängig ist. Ein bekanntes Beispiel hier ist der deutsche *Day-Ahead-Market* [BUNDESNETZAGENTUR 2022]. Für die Entwicklung von Methoden zur Betriebsplanung mittels DSM, welche in Abschnitt 3.2.1 genauer erläutert werden, wird meist auf einen bestimmten Zeitraum des Day-Ahead-Market in der Vergangenheit zurückgegriffen, um exemplarisch die Machbarkeit und die Einsparmöglichkeiten bei der Verwendung von DSM für die Betriebsplanung zu zeigen.

Benötigte Simulationsmodelle Neben den benötigten Methoden zur Ermittlung einer optimalen Betriebsplanung mittels DSM werden für die in Abbildung 3.6 dargestellten Zusammenhänge zwischen der realen ASU, der Betriebsstrategie, dem Equipmentdesign und dem DSM eine Vielzahl an Simulationsmodellen benötigt, die auf die jeweiligen Anforderungen abgestimmt sind. Entsprechend der Simulationsaufgabe unterscheiden sich die Modelle in ihrer Modellgranularität sowie der Notwendigkeit von dynamischen

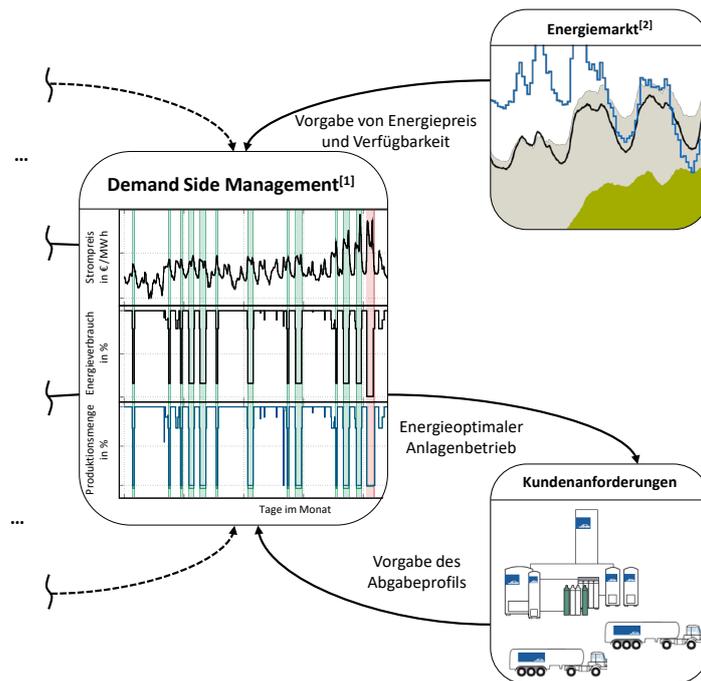


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der äußeren Einflüsse auf das DSM, [1] aus OBERMEIER ET AL. (2019) und [2] aus KENDER ET AL. (2021b)

oder stationären Betrachtungen. Die detailgetreue Abbildung des Anlagenbetriebs benötigt die feinste Modellgranularität. Dies erfordert ein hochdetailliertes dynamisches Anlagenmodell, die virtuelle ASU. Diese besteht aus rigorosen Modellen, welche auch in der Lage sind, z.B. die Fluidynamik der Kolonnen bestmöglich aufzulösen. Diese Granularität ist ebenfalls für die dynamischen Designstudien im Rahmen des design for dynamics notwendig.

Um das vom DSM vorgegebene langfristige Lastprofil bestmöglich auf der Anlage umzusetzen, können dynamische *Regelmodelle* verwendet werden, deren Aufgabe es ist, die dafür optimalen Sollwerte oder Stellgrößen für die Basisregelung zu bestimmen. Da diese Modelle für dynamische Optimierungen verwendet werden, ist der Fokus bei der Modellierung auf einer geringen Rechenzeit bei hinreichender Genauigkeit. Gegenüber der virtuellen ASU ist die Modellgranularität geringer. Oftmals werden hier Modellreduktions- oder datengetriebene Ansätze für rechenintensive verfahrenstechnische Grundoperationen wie z.B. Rektifikationskolonnen verwendet.

Bei den *klassischen Designmodellen* werden detaillierte stationäre Modelle verwendet. Diese liefern abhängig von Kundenspezifikationen, z.B. für die Produktmengen, thermodynamisch optimierte Prozessparameter für ausgewählte Betriebspunkte. Auf Basis des stationären Prozessdesigns kann das Equipment entsprechend ausgelegt und optimiert werden. Bei den *flexiblen Designmodellen* kommen neben den Anforderungen des Kunden noch die des energieoptimalen Betriebs hinzu. Dabei werden zusätzliche Aspekte, wie

z.B. die optimale Speicherkapazität von kryogenen Produkten oder die Anzahl an Lastwechselfvorgängen, als neue Designanforderungen an die ASU berücksichtigt.

Für die Darstellung der anlagenspezifischen Randbedingungen bei der Verwendung von DSM werden *Surrogat-Modelle* verwendet, die die notwendigen Anlageninformationen in einem vereinfachten Ersatzmodell bereitstellen. Dabei können stationäre Anlagenmodelle verwendet werden, die beispielsweise einen Zusammenhang zwischen Produktionslast und Energieverbrauch der betrachteten ASU herstellen. Wie auch bei der Datenlage bzgl. der äußeren Einflüsse auf das DSM ist die Güte der Betriebsplanung stark vom verfügbaren Informationsgehalt der Surrogat-Modelle abhängig, die zur Darstellung des Prozesses verwendet werden. Jedoch ist die Basis für ein Surrogat-Modell nicht zwingend eine stationäre Prozesssimulation. Diese wird lediglich dazu genutzt, eine notwendige Datenbasis für das DSM zu generieren. Es kann dafür auch ein reines Datenmodell verwendet werden, solange die für eine Betriebsplanung relevanten Zusammenhänge vorhanden sind. Dabei handelt es sich hauptsächlich um Relationen zwischen benötigter Energie, eingesetztem Ausgangsstoff und den davon abhängigen möglichen Produktionsmengen.

Die Verwendung von DSM für ASUs ist schon seit über 30 Jahren Gegenstand der Forschung. Dabei werden hauptsächlich die Zusammenhänge zwischen der realen Anlage, der gewählten Betriebsstrategie und dem DSM (siehe Abbildung 3.6 oberer Pfad) untersucht. Daher wird in den nachfolgenden Abschnitten auf die Literatur zur modelltheoretischen Umsetzung von DSM (siehe Abschnitt 3.2.1) und zur Entwicklung von Regelungskonzepten im Rahmen von APC (siehe Abschnitt 3.2.2) eingegangen, bevor in Abschnitt 3.3 der Stand der Technik zur dynamischen Simulation von ASUs aufgearbeitet wird.

3.2.1 Energieoptimaler Betrieb von Luftzerlegungsanlagen – Demand-Side-Management

Prinzipiell zielen sowohl die Entwicklung von neuartigen Regelungskonzepten als auch die Betriebsplanung mittels DSM darauf ab, einen energieoptimalen Betrieb in einem volatilen Marktumfeld zu ermöglichen. Ein großer Unterschied ist dabei der jeweils betrachtete Zeitraum der Vorausplanung. Abhängig davon ist der notwendige Detailgrad, mit dem die Randbedingungen für einen flexiblen Anlagenbetrieb einer ASU, dargestellt in Abbildung 3.6, modelltechnisch berücksichtigt werden müssen. Bei der Betriebsplanung handelt es sich um eine langfristige Vorausplanung über Tage bis hin zu mehreren Wochen. Die Regelungskonzepte setzen die vorher bestimmte langfristige Betriebsplanung kurzfristig, also im Bereich von Minuten bis mehreren Stunden, auf der Anlage um. Daraus etabliert sich eine Hierarchie im Informationsfluss. Eine allgemeine Möglichkeit, dies graphisch darzustellen, ist die Automatisierungspyramide nach ISA-S95 Standard [ANSI/ISA 2013], dargestellt in Abbildung 3.8.

Die Automatisierungspyramide stellt einen hierarchischen Zusammenhang zwischen Entscheidungen auf Unternehmens- (*Level 4*) und Betriebsplanungsebene (*Level 3*)

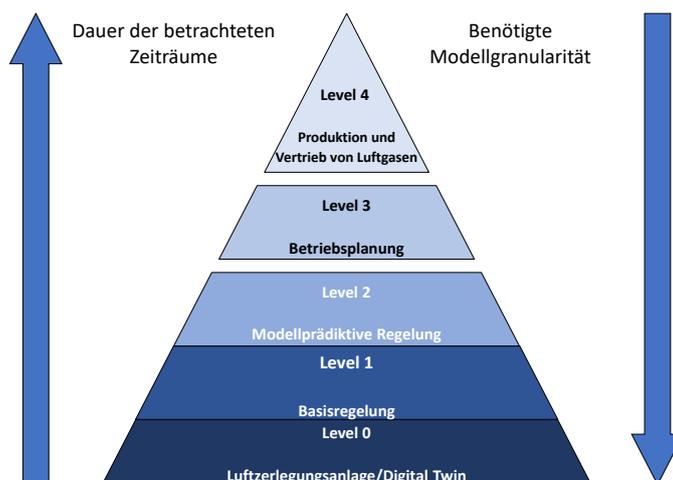


Abbildung 3.8: Automatisierungspyramide nach ISA-S95 Standard am Beispiel einer ASU [ECKER 08.04.2022] analog zu HARJUNKOSKI ET AL. (2014)

sowie der Produktion (*Level 0-2*) her. Dabei wird dargestellt, wie sich Entscheidungen auf Unternehmensebene bis hin zur eigentlichen Produktion auswirken. Es handelt sich um ein standardisiertes Konzept, welches als Richtlinie für die Integration von Entscheidungsebenen in einem Unternehmen hergenommen werden kann. [HARJUNKOSKI ET AL. 2014]

In Abbildung 3.8 ist die Automatisierungspyramide auf das Beispiel einer flexiblen ASU angewendet. Auf Unternehmensebene wird in *Level 4* die Produktion und der Vertrieb von Luftgasen über Wochen bis Monate hinweg geplant. Diese Entscheidungen bestimmen die Betriebsplanung einzelner Anlagen in *Level 3* mittels DSM. Mit Hilfe von Regelungskonzepten, in diesem Fall MPC (*Level 2*), werden hier, basierend auf der Betriebsplanung, optimale Sollwerte oder Stellgrößen für die Basisregelung (*Level 1*) berechnet, welche dann die Produktion der entsprechenden ASU (*Level 0*) beeinflussen. Dabei nimmt die Dauer des betrachteten Entscheidungszeitraums von *Level 0* bis *Level 4* hin zu, wohingegen der benötigte Detailgrad für die modelltheoretische Darstellung (Modellgranularität) der jeweiligen Ebene in Richtung *Level 0* hin zunimmt. Die ASU wird dabei über ihren DT modelltechnisch abgebildet.

Die Entscheidungen auf Unternehmensebene (*Level 4*) werden im Rahmen dieser Arbeit nicht genauer betrachtet. Entsprechend der Hierarchie der darunterliegenden Ebenen wird im Folgenden sukzessive mit steigender Modellgranularität auf die Literatur der modelltechnischen Umsetzung der jeweiligen Ebene bis hin zur Betrachtung des Betriebs einer ASU in *Level 0* eingegangen. Dabei werden zunächst die Grundlagen des DSM erläutert und an einem konkreten Beispiel verdeutlicht, bevor die relevante Fachliteratur zur Modellierung von DSM am Beispiel der ASU aufbereitet wird.

Im Allgemeinen gibt es beim DSM zwei Möglichkeiten den Schwerpunkt der Betriebsplanung zu legen. Auf der einen Seite kann die Energieeffizienz, engl.: *energy efficiency* (EE),

des Prozesses mehr im Fokus liegen oder auf der anderen Seite die Gewichtung mehr marktorientiert, engl.: *demand response* (DR), (Minimierung der Betriebskosten, engl.: *operating expenditures* (OPEX)) gelegt werden [WORLD BANK 2005]. In beiden Fällen ist jedoch das Ziel, unter der Berücksichtigung von anlagenspezifischen Randbedingungen in Abhängigkeit der geforderten Kriterien, ein optimales Lastprofil der Anlage zu bestimmen. Dem DSM liegt ein Optimierungsproblem zugrunde (*Betriebsoptimierung*), welches vorzugsweise unter der Verwendung von gemischt-ganzzahliger linearer Programmierung, engl.: *mixed integer linear programming* (MILP), gelöst wird [ZHANG ET AL. 2016a]. Abhängig vom verwendeten Surrogat-Modell kann jedoch auch gemischt-ganzzahlige nichtlineare Programmierung, engl.: *mixed integer non-linear programming* (MINLP), verwendet werden [IERAPETRITOU ET AL. 2002].

Die ASU ist nach dieser Definition ein Sonderfall für die Betriebsoptimierung, da die OPEX hauptsächlich aus den Energiekosten für die Luftverdichter bestehen. Die zu minimierende Zielfunktion kann demnach als die Summe des Energieverbrauchs und des entsprechenden Strompreises zum betrachteten Zeitpunkt formuliert werden [ZHANG ET AL. 2016a]. Am Beispiel einer ASU mit Speichermöglichkeiten für deren Produkte LIN und LOX (siehe Abbildung 3.5 Kombispeicher) wird im Folgenden ein Betriebsoptimierungsszenario mittels DSM detailliert erläutert, welches in OBERMEIER ET AL. (2019) veröffentlicht wurde. Abbildung 3.9 zeigt den optimierten Energieverbrauch (mittleres Diagramm) und die entsprechenden Produktmengen (unteres Diagramm) in Abhängigkeit des Strompreises (oberes Diagramm) für den Zeitraum von einem Monat.

Im betrachteten Beispiel wird die Datenbasis für das Surrogat-Modell der ASU aus multiplen stationären Simulationen verschiedener Betriebspunkte im möglichen Betriebsbereich der Anlage generiert. Alternativ wäre die Möglichkeit der Erzeugung eines Surrogat-Modells auf Basis von Betriebsdaten möglich [ZHANG ET AL. 2016c]. Die Güte der Betriebsoptimierung steigt mit der Genauigkeit der Beschreibung des stationären Anlagenverhaltens. Ein weiteres Kriterium hierfür ist aber v.a. die Approximation der Anlagendynamik. Da deren rigorose Beschreibung in einer hohen Anzahl an überwiegend nichtlinearen Gleichungen und somit einem nichtlinearen Gleichungssystem resultieren würde, wird das transiente Verhalten der ASU durch Verwendung von Nebenbedingungen, die z.B. die maximale Lastwechselgeschwindigkeit definieren, approximiert. Eine Besonderheit in dem Beispiel nach OBERMEIER ET AL. (2019) ist die Berücksichtigung der Lebensdauer der Anlagenkomponenten durch z.B. der Vorgabe der maximalen Anzahl an (Wieder-) Anfahrvorgängen der Anlage pro Tag.

Die in Abbildung 3.9 dargestellte Betriebsplanung zeigt, dass im betrachteten Zeitraum die Anlage lediglich einmal komplett heruntergefahren wird, wohingegen der Modus der Flüssigeinspeisung ein oft genutztes Mittel bei moderaten Strompreismaxima ist. Dabei wird die ASU in Unterlast betrieben und der restliche Produktbedarf über gespeicherte kryogene Flüssigkeit in den Produkttanks gedeckt, welche bei günstigen Strompreisen zusätzlich produziert wurde. In OBERMEIER ET AL. (2019) wird das in Abbildung 3.9 dargestellte Ergebnis mit einem optimierten Betriebsprofil ohne die Berücksichtigung der Anlagenlebensdauer verglichen, mit dem Ergebnis, dass die OPEX ohne diese

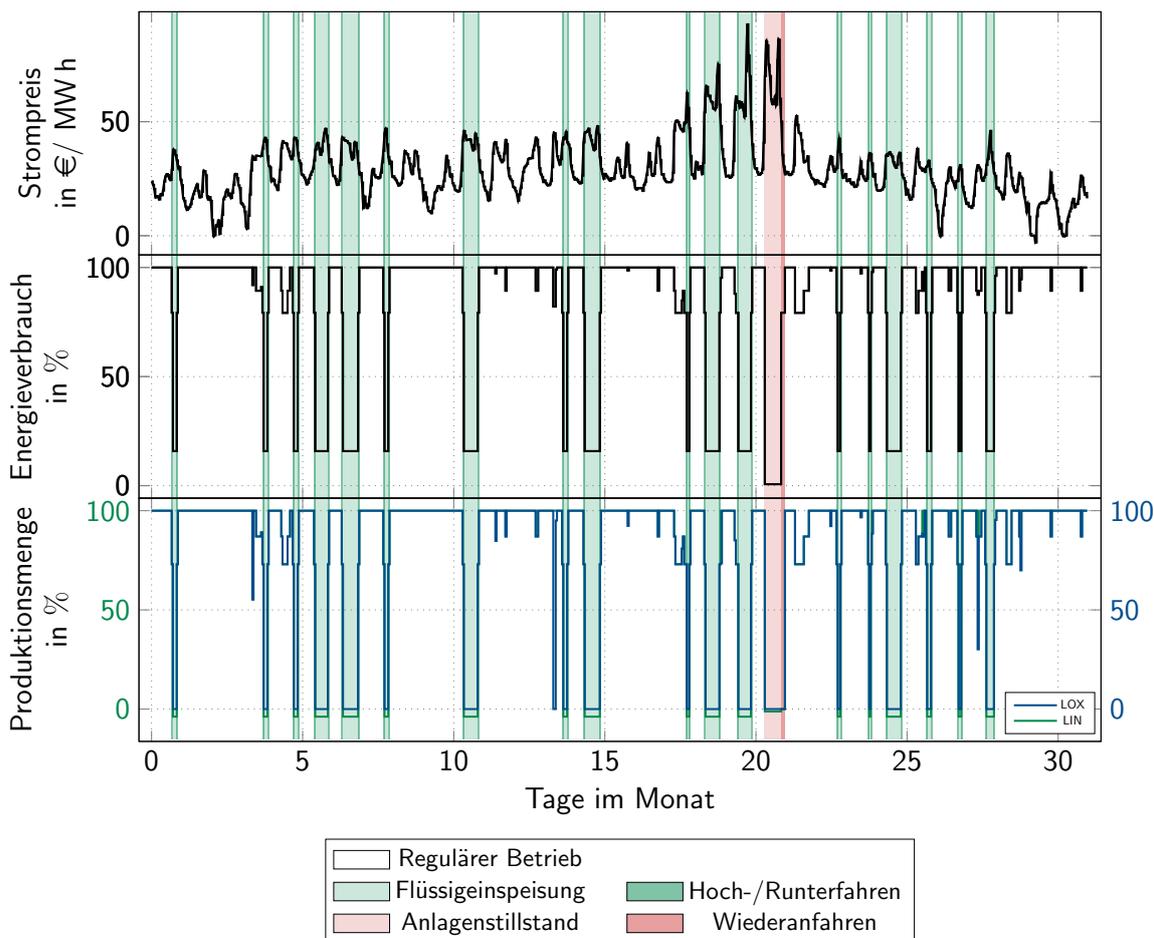


Abbildung 3.9: Energieoptimales Betriebsprofil für eine ASU mit LIN- und LOX-Produktion nach OBERMEIER ET AL. (2019). Darstellung des Strompreises (oben), des optimierten Energieverbrauchs (Mitte) und der entsprechenden Produktionsraten (unten) für den Januar 2016

Berücksichtigung geringer sind, da die Anlage im betrachteten Zeitraum dreimal so oft abgeschaltet wird, jedoch die voraussichtliche Lebenszeit der Anlage um etwa 14.6 Jahre verkürzt wird.

Die deutlich unterschiedliche Lebensdauer unterstreicht, dass die Güte der Betriebsoptimierung im Rahmen des DSM mit der Genauigkeit der Darstellung des Anlagenverhaltens im Surrogat-Modell zunimmt. Durch neue Möglichkeiten, das (dynamische) Anlagenverhalten mittels Simulation zu untersuchen oder große Mengen an Betriebsdaten gezielter und effizienter auszuwerten, steigt der verfügbare Informationsgehalt über den Betrieb einer ASU und somit die Möglichkeiten zur Erstellung eines Surrogat-Modells über die Jahre stetig an. Dies wird bei der Betrachtung der Arbeit von DARYANIAN ET AL. (1989), einer der ersten Veröffentlichungen zum Thema DSM bei ASUs, besonders deutlich. Das dem Optimierungsproblem zugrunde liegende vereinfachte Surrogat-Modell der Anlage umfasst lediglich eine lineare Abhängigkeit der Produktmengen vom Strompreis. Um den Detailgrad der Surrogat-Modelle zu erhöhen, wurden von IERAPETRITOU ET AL. (2002) unterschiedliche Betriebszustände der Anlage eingeführt. Pro Zeitschritt darf

sich die betrachtete Anlage nur in einem Betriebszustand aufhalten, der aus mehreren zulässigen stationären Betriebspunkten besteht. Das energieoptimale Betriebsprofil wird zunächst mittels MINLP-Optimierung bestimmt. Da diese aber für eine Betrachtung eines längeren Zeithorizonts zu rechenzeitintensiv wird, wird die Problemstellung durch eine MILP-Formulierung approximiert und das Optimierungsproblem erneut gelöst. Darüber hinaus wird ein Modell für die Vorhersage von Energiepreisen entwickelt. Mit der Verwendung von aktuellen Daten von Netzbetreibern anstatt eines Energiepreismodells entwickeln KARWAN & KEBLIS (2007) die auf Betriebszuständen basierenden Surrogat-Modelle weiter. Dabei werden Nebenbedingungen wie Totzeiten beim Abschalten der Anlage oder zusätzliche Energiekosten für das Fahren von Lastwechseln bei der Betriebsoptimierung berücksichtigt. Ein Ergebnis der Studie ist die Erkenntnis, dass die Rentabilität der Möglichkeit, auf kurzfristige Schwankungen im Energiepreis einzugehen, vom Grad der Lastflexibilität der ASU abhängig ist.

In MITRA ET AL. (2012) werden weitere Randbedingungen für den Übergang zwischen Betriebszuständen definiert, um so die Dynamik der Lastwechselfvorgänge besser darstellen zu können. Mit Hilfe des DSM können hier über 10 % Einsparungen generiert werden. Darüber hinaus ist eine weitere Erkenntnis dieser Studie, dass sich die Möglichkeit zur zusätzlichen Produktion und Speicherung von kryogenen Produkten bei geringen Energiepreisen positiv auf die Anlagenflexibilität und somit auf die Reduktion der OPEX auswirkt. Im Rahmen dieser Forschungsgruppe ist eine Vielzahl an Veröffentlichungen durch u.a. MITRA ET AL. (2014), ZHANG ET AL. (2015), ZHANG ET AL. (2016a) und ZHAO ET AL. (2019) entstanden, die sich mit weiteren zu beachtenden Aspekten für die optimale Betriebsplanung einer ASU befassen. Unter anderem wird hier der Einfluss von Unsicherheiten bei der Vorhersage des Strompreises oder des Abgabeprofiles auf die Betriebsplanung untersucht. Darüber hinaus wird darauf eingegangen, wie sich volatile Strompreise auf Investitionsstrategien für die Beschaffung oder Überholung von Equipment auswirken. Weiter wird gezeigt, wie unterschiedliche Tarifstrukturen bei der Energiebeschaffung bei der Formulierung des Optimierungsproblems berücksichtigt werden können. In ZHAO ET AL. (2019) wird zusätzlich der Betrieb von zwei parallel geschalteten ASUs durch die Verwendung eines komplexen Betriebszustandsübergangnetzwerks, engl.: *advanced process state transition network*, durchgeführt.

Eine erneute Verbesserung der Surrogat-Modelle ist die Verwendung von konvexen Hüllen, was sich vorteilhaft auf das Lösungsverhalten eines MILP-Optimierungsproblems auswirkt. Dabei werden nicht-konvexe Betriebszustände durch eine Zusammenführung von multiplen konvexen Betriebszuständen mit Hilfe von Polytopen (Ersatzmodell des Betriebszustands mit konvexen Hüllen, engl.: *convex region surrogate* (CRS)) angenähert. Jedes Polytop enthält dabei eine Linearisierung der Betriebspunkte. Somit repräsentieren die CRS eine stückweise lineare Annäherung des dargestellten Prozesses, was eine bessere Darstellung der Nichtlinearitäten erlaubt. Eine ausführliche Erklärung dieser Methode ist in ZHANG ET AL. (2016b) zu finden. Anwendung auf das DSM einer ASU findet dies bereits in ZHANG ET AL. (2015). Basierend darauf entwickeln OBERMEIER ET AL. (2021) einen Ansatz, das verwendete Surrogat-Modell für die ASU durch kleinere, stückweise lineare Teilmodelle anzunähern, die es analog zu den CRS erlauben,

die Nichtlinearitäten des Gesamtprozesses besser abzubilden. Der Unterschied zu den CRS-Modellen ist, dass hier die Polytopen so gewählt werden, dass bestimmte Betriebszustände mit einer definierten Genauigkeit angenähert werden können. Darüber hinaus wird bei den Veröffentlichungen dieser Forschungsgruppe, wie bereits ausführlich anhand Abbildung 3.9 diskutiert, die Lebensdauer der Komponenten der ASU bei einer Betriebsoptimierung berücksichtigt [OBERMEIER ET AL. 2019].

In der Dissertation von SCHÄFER (2020) wird ein nichtlineares Vorgehen anstelle der Verwendung linearer oder stückweise linearer Surrogat-Modelle vorgestellt. Zu diesem Zweck wird ein datenbasiertes nichtlineares Surrogat-Modell einer ASU mit LIN- und LOX-Produktion durch die Verwendung von künstlichen neuronalen Netzen, engl.: *artificial neuronal networks* (ANN), formuliert, welche in der Lage sind, die Nichtlinearitäten der ASU besser abzubilden. Darüber hinaus wird das Optimierungsproblem in Form von reduzierten Zuständen, engl.: *reduced space*, formuliert, was in Kombination mit geeigneten Lösungsalgorithmen zu Vorteilen beim Lösen des MINLP-Optimierungsproblems führen kann. Weitere Informationen und Anwendungsfälle dazu sind der Dissertation von SCHÄFER (2020) sowie deren Sekundärliteratur zu entnehmen.

ZHU ET AL. (2011a) und ZHU ET AL. (2011b) verwenden keine Surrogat-Modelle für die Betriebsoptimierung, sondern ein stationäres Modell einer ASU mit Argonproduktion, um das Verhalten der ASU detaillierter darstellen zu können. Dieses wird über einen Zeitraum von 24 h mit vier unterschiedlichen Energiepreisen optimiert. Unter Berücksichtigung von Unsicherheiten in der Produktabnahme und linearisierten Lastwechselfvorgängen können 5 % Energiekosten eingespart werden.

Zusammenfassend lässt sich erkennen, dass sich verschiedene Arbeitsgruppen über Jahrzehnte hauptsächlich mit der Optimierung des Betriebs von ASUs im Rahmen des DSM befasst haben. Ein Fokus dabei ist die kontinuierliche Weiterentwicklung der verwendeten Surrogat-Modelle. Das Hauptaugenmerk dabei liegt darauf, die Darstellung verschiedener Einflüsse und Limitierungen des Anlagenbetriebs zu verbessern, um die Güte der resultierenden Betriebsoptimierung und die daraus abzuleitenden Entscheidungen für den Betrieb oder das Design der Anlagen zu erhöhen. Jedoch hängt dies ebenfalls von der Datenbasis ab, die verfügbar ist, um das transiente Anlagenverhalten, wie z.B. Lastwechselgeschwindigkeiten oder Abschalt- und Wiederanfahrvorgänge, durch eine geeignete Approximation berücksichtigen zu können. Hier ist es von Vorteil, über präzise dynamische Anlagenmodelle zu verfügen, um z.B. Vorhersagen für die Dauer von Lastwechselszenarien zu treffen, die nicht über Betriebsdaten abgedeckt werden können. Das initial gezeigte Beispiel von OBERMEIER ET AL. (2019) verdeutlicht dabei die Einflüsse der Randbedingungen des lastflexiblen Betriebs einer ASU auf das Ergebnis einer Betriebsoptimierung und unterstreicht die Abhängigkeit der Ergebnisse des DSM vom Informationsgehalt des verwendeten Modells zur Beschreibung der ASU. Für weiterführende Informationen zu dieser Thematik ist auf die Sekundärliteratur der betrachteten Publikationen sowie auf die Dissertation von OBERMEIER (2021) zu verweisen. Da die stationäre Simulation in der Betrachtung der Literatur überwiegt, finden sich die Surrogat-Modelle in Abbildung 3.6 im rechten unteren Bereich zwischen Equipmentdesign und DSM wieder.

In PATTISON & BALDEA (2014) wird ein Ansatz mit höherer Modellgranularität des Anlagenmodells verfolgt, um das dynamische Anlagenverhalten einer ASU bei einem lastflexiblen Betrieb berücksichtigen zu können. Hier werden stationäre Modelle mit zeitabhängigen Speichertermen erweitert. Die Zeitkonstanten der Speicherterme bestimmen dabei die Gradienten der Lastwechsellvorgänge. Die dadurch resultierenden zeitlichen Abläufe bei Lastwechsellvorgängen sind zwar nicht zwingend realitätsgetreu, jedoch werden die stationären Grenzfälle (Betriebspunkte) korrekt abgebildet. Mit Hilfe dieses Ansatzes wird mittels Optimierung ein verbessertes Anlagendesign für einen fluktuierenden Energiemarkt bestimmt, allerdings keine Betriebsoptimierung durchgeführt.

Ebenfalls aus dieser Forschungsgruppe stammt die Aussage, dass sich durch eine steigende Volatilität an den (Energie-) Märkten die Anzahl und Dauer von Lastwechsellvorgängen mit den Zeitskalen der Entscheidungen einer Betriebsoptimierung im Rahmen des DSM überschneidet [PATTISON ET AL. 2017]. Dies kann dazu führen, dass energieintensive Prozesse über einen längeren Zeitraum keinen stationären Betriebspunkt annehmen, was es erfordert, das dynamische Anlagenverhalten während Lastwechsellvorgängen in der längerfristigen Betriebsplanung detailliert abzubilden. Bezogen auf die in Abbildung 3.8 dargestellte Automatisierungspyramide werden hier zwei Ebenen, *Level 2* und *Level 3*, zusammengefasst. PATTISON ET AL. (2017) unterscheiden hier zwischen zwei Paradigmen: *bottom-up* oder *top-down*. Beim *bottom-up*-Ansatz, welcher detailliert in Abschnitt 3.2.2 beschrieben wird, werden ökonomische Aspekte auf der Ebene der Anlagenregelung berücksichtigt, wohingegen die Vorgehensweise des *top-down*-Ansatzes versucht, das dynamische Anlagenverhalten in die Betriebsoptimierung zu integrieren. Beide Vorgehensweisen zielen darauf ab, die bestmöglichen Ergebnisse für zwei Ebenen der Automatisierungspyramide aus dem Lösen eines Optimierungsproblems zu erhalten. Beim *top-down*-Ansatz wird *Level 2* in *Level 3* eingegliedert.

Die Berücksichtigung des dynamischen Anlagenverhaltens in der Betriebsoptimierung führt zu der Formulierung eines gemischt-ganzzahligen dynamischen Optimierungsproblems, engl.: *mixed integer dynamic optimization* (MIDO). Da das Lösen solcher Optimierungsprobleme mit rigorosen dynamischen Modellen zu rechenaufwendig ist, können Zeitskalenüberbrückungsmodelle, engl.: *scale bridging models* (SBMs), verwendet werden. Dabei handelt es sich um Modelle, die lediglich einen relevanten Teil des dynamischen Anlagenverhaltens abbilden. Dies ist auf eine Studie von DU ET AL. (2015) zurückzuführen, deren Ergebnisse zeigen, dass nur eine Teilmenge der Variablen eines rigorosen dynamischen Anlagenmodells notwendig ist, um das transiente Verhalten ausreichend gut für eine Betriebsoptimierung zu beschreiben. Diese Variablen werden als betriebsplanungsrelevant, engl.: *scheduling-relevant*, bezeichnet und erfüllen die folgenden Kriterien:

- nahe ihrer (Betriebs-) Grenzen im stationären Betrieb,
- Teil der Zielfunktion der Betriebsoptimierung (Einfluss auf OPEX).

Bei den Modellen, die diese notwendige Teilmenge an Variablen beinhalten, handelt es sich um reduzierte, engl.: *low-order*, Modelle, die auf bestehenden Anlagendaten

basieren (datengetriebene Modelle) oder mittels Modellreduktionsansätzen von rigorosen Modellen abgeleitet werden können. Diese SBMs werden verwendet, um die Zeitskalen zwischen der (langfristigen) Betriebsplanung und der (kurzfristigen) Anlagenregelung zu überbrücken. [KELLEY ET AL. 2022]

PATTISON ET AL. (2016) entwickeln datengetriebene SBMs, um eine ASU zur reinen N_2 -Produktion darzustellen und führen damit eine Betriebsoptimierung in Form eines MIDO durch. Dabei kommen sie zu dem Ergebnis, dass betrachtet über einen Zeitraum von drei Tagen gegenüber einem Fall mit konstanter Produktion 2.7% des Energieverbrauchs eingespart werden können. Dieses Beispiel wird in PATTISON ET AL. (2017) dahingehend erweitert, dass ein variabler Zeithorizont, engl.: *moving horizon*, betrachtet wird, der Veränderungen im Energiepreis und dem Produktbedarf berücksichtigt. Die Einsparungen im Energieverbrauch liegen über einen Zeitraum von vier Tagen bei 4.8%. Darüber hinaus werden hier ungeplante Störszenarien als Stresstest für die Betriebsoptimierung betrachtet.

In TSAY ET AL. (2018a) und TSAY ET AL. (2019) werden datengetriebene SBMs für eine ASU mit Argonsystem erstellt und in eine Hammerstein-Wiener Form übergeführt, die es erlaubt, lineare dynamische Zusammenhänge als Zustandsraummodell zu repräsentieren. Nichtlineare Dynamiken werden dabei durch stückweise lineare Funktionen approximiert. Diese Formulierung ist notwendig, um den hohen Rechenaufwand eines nichtlinearen MIDO und somit die benötigte Rechenzeit für große Systeme wie eine ASU mit Argonsystem zu reduzieren. Abhängig vom Energiemarkt ist hier gegenüber einem stationären Betrieb ein Einsparungspotential der OPEX von maximal 13% möglich. In diesem Kontext ist auch die Arbeit von KELLEY ET AL. (2018) aus der gleichen Forschungsgruppe zu erwähnen, die es erlaubt, durch Linearisierungen die Nichtlinearitäten des transienten ASU-Verhaltens mittels MILP-Formulierung abzubilden, welche, verglichen mit einer Formulierung als MIDO, weitaus effizienter gelöst werden können. Dieses Framework wird in KELLEY ET AL. (2020) um die Berücksichtigung von Unsicherheiten im Strompreis und Produktbedarf erweitert und auf eine ASU zur N_2 -Produktion angewendet. In der aktuellsten Veröffentlichung dieser Forschungsgruppe wird eine Linearisierung der datengetriebenen SBMs via autoregressiv-exogen-Modellen, engl.: *autoregressive-exogenous*, durchgeführt, was eine Betriebsoptimierung einer ASU mit Argonproduktion erlaubt und zu potentiellen Kosteneinsparungen von 8.91% verglichen mit einem stationären Anlagenbetrieb führt [KELLEY ET AL. 2022].

Im Gegensatz zum beschriebenen top-down-Ansatz, welcher ausgehend von einem Betriebsoptimierungsproblem versucht, die Anlagendynamik in diese Ebene zu integrieren (siehe Abbildung 3.8 *Level 2* in *Level 3*), ist die Grundlage für den bottom-up-Ansatz, welche im folgenden Abschnitt beschrieben wird, die verwendete Regelungsstrategie. Es wird jedoch auch bei der Beschreibung des top-down-Ansatzes wieder verdeutlicht, dass es in einem lastflexiblen Betrieb einer ASU notwendig ist, detaillierte Informationen über das dynamische Anlagenverhalten zu besitzen und dieses mit entsprechender Genauigkeit abbilden zu können, um möglichst zuverlässige Ergebnisse für eine Betriebsoptimierung zu erhalten. Wie bei der Darstellung der Anlage über Surrogat-Modelle zielen auch hier kontinuierliche Weiterentwicklungen darauf ab, das transiente Anlagenverhalten mit

einem möglichst hohen Detaillierungsgrad unter der Berücksichtigung der Anforderungen an die Rechenzeit abzubilden. SBMs lassen sich in Abbildung 3.6 im rechten oberen Bereich zwischen Betriebsstrategie und DSM eingliedern.

3.2.2 Anlagenbetrieb in einem volatilen Marktumfeld – Entwicklung von neuartigen Regelungskonzepten für den lastflexiblen Betrieb

Eine weitere Option, um eine Anlage in einem Umfeld mit schwankendem Produktbedarf und Strompreisen optimal zu betreiben, ist die Möglichkeit, ökonomische Aspekte der Betriebsplanung in die Ebene der Anlagenregelung zu integrieren. Bezogen auf die Automatisierungspyramide in Abbildung 3.8 wird beim bottom-up-Ansatz die Ebene der Betriebsplanung (*Level 3*) in die der MPC (*Level 2*) integriert.

Eine Möglichkeit hier ist die Verwendung von APC-Konzepten mit ökonomischer Zielfunktion wie die ökonomische nichtlineare modellprädiktive Regelung, engl.: *economic nonlinear model predictive control* (eNMPC) [AMRIT ET AL. 2013]. Dabei wird ein dynamisches Optimierungsproblem eines dafür geeigneten Anlagenmodells (Regelmodell) mit variablem Zeithorizont gelöst, mit dem Ziel, z.B. die OPEX zu minimieren. Das Ergebnis der dynamischen Optimierung sind Sollwertvorgaben für die Anlagenregelung, die für einen energieoptimalen Betrieb notwendig sind. Da die Optimierung in Echtzeit gelöst werden muss, ist entweder die entsprechende Rechenkapazität oder Modellreduktion notwendig [ENGELL 2007]. Daher gewinnt die Integration von ökonomischen Zielfunktionen in die MPC-Ebene, obwohl schon seit über 30 Jahren Gegenstand der Forschung, erst im letzten Jahrzehnt immer mehr an Aufmerksamkeit und durch die Energiewende auch an Notwendigkeit [MORARI ET AL. 1980].

Für einen energieoptimalen Betrieb von hochgradig nichtlinearen Prozesse wie eine ASU ist die Verwendung von eNMPC besonders von Interesse jedoch aus diesem Grund auch herausfordernd. Die Komplexität der Implementierung von eNMPC auf eine ASU zeigt sich bereits in der Anwendung von reiner nichtlinearen modellprädiktiven Regelung, engl.: *nonlinear model predictive control* (NMPC), ohne eine ökonomische Zielfunktion. ROFFEL ET AL. (2000) verwenden NMPC mit Hilfe eines rigorosen dynamischen Modells einer Linde Doppelkolonne als vereinfachte Repräsentation einer ASU und zeigen, dass der NMPC gegenüber einer konventionellen Regelung verbessert auf Betriebsstörungen eingehen kann. Jedoch wird diese Studie aufgrund des hohen Rechenaufwands nicht für eine Gesamtanlage durchgeführt. Eine klassische Möglichkeit zur Reduktion des Rechenaufwands ist die Verwendung von reduzierten Modellen. In CHEN ET AL. (2007) wird basierend auf einem reduzierten dynamischen Modell der Linde Doppelkolonne ein Vergleich zwischen einer linearen modellprädiktiven Regelung, engl.: *linear model predictive control* (LMPC), und einer NMPC durchgeführt mit dem Ergebnis, dass die NMPC besser auf aggressive Störungen reagieren kann. Eine andere Möglichkeit wird in HUANG ET AL. (2009) beschrieben. Basierend auf dem rigorosen Modell der Linde Doppelkolonne von ROFFEL ET AL. (2000) wird die NMPC-Algorithmik verbessert, was

eine Reduktion des Rechenaufwands mit sich bringt. In HUANG & BIEGLER (2012) wird im Rahmen dieses Frameworks die eNMPC angewendet. Gegenüber der Verwendung eines herkömmlichen NMPC mit Führungsverhalten, engl.: *setpoint-tracking*, kann hier, in einem Zeitraum von 24 h, ein Einsparungspotential von 9.7 % erreicht werden.

Weitere Veröffentlichungen zur Anwendung von eNMPC auf eine ASU sind hauptsächlich im Kopernikus-Projekt SynErgie FlexASU in der Arbeitsgruppe von Prof. Mitsos am Lehrstuhl für Systemverfahrenstechnik der Rheinisch-Westfälischen Hochschule Aachen (AVT.SVT) entstanden. Das bereits beschriebene Beispiel einer Linde Doppelkolonne wird ebenfalls in SCHÄFER ET AL. (2018) betrachtet. Hier wird ein zweistufiges verbessertes Prozessführungssystem, engl.: *advanced process control system* (APCS), entwickelt. Im ersten Schritt werden offline in einer dynamischen Optimierung des rigorosen nichtlinearen Modells optimale Sollwertänderungen für den gewünschten Lastwechselvorgang bestimmt. Im zweiten Schritt wird die Lastveränderung unter Berücksichtigung der Anlagenantwort der Regelstrecke und möglichen Betriebsstörungen durchgeführt. Dabei werden online mittels eines linearisierten Zustandsraummodells die Sollwerte der Basisregelung vorgegeben und die Einhaltung der Anforderungen an die Produktreinheiten überwacht. Für bestimmte Szenarien, wie z.B. einer Erhöhung der LIN-Produktionsrate, können, verglichen mit bisherigen Methoden, bis zu 50 % schnellere Lastwechselgeschwindigkeiten erzielt werden. CASPARI ET AL. (2018) wenden eNMPC auf das Anlagenbeispiel einer ASU zur reinen N₂-Produktion analog zu PATTISON ET AL. (2016) an. In dieser Arbeit wird ebenfalls eine zweistufige Optimierungsstrategie verfolgt. In einer offline dynamischen Optimierung des Anlagenbetriebs über den Zeitraum von einem Tag werden optimale Sollwertänderungen vorausberechnet. Diese dienen als Startwerte für den eNMPC, welcher davon ausgehend den Anlagenbetrieb unter Berücksichtigung von weiteren Störungen optimiert. Jedoch wird hier die Anzahl an Iterationen des Optimierers pro betrachteten Zeitpunkt limitiert, engl.: *suboptimal fast-update method*, um bei hinreichender Genauigkeit der Optimierung die Anforderungen an die Rechenzeit zu erfüllen.

Die größte Herausforderung bei der Anwendung des eNMPC ist die Anforderung an die Echtzeitfähigkeit. Dadurch entstehen Limitierungen für die Größe des zu optimierenden (Anlagen-) Modells. Es wird auf der einen Seite versucht, die Algorithmen und die Methoden zum Lösen eines eNMPC-Problems weiterzuentwickeln. Auf der anderen Seite wird analog zu den SBMs versucht, die Größe des zu optimierenden Gleichungssystems durch geeignete Modellreduktionsverfahren, unter der Prämisse der hinreichenden Genauigkeit, zu reduzieren, um so eine Anwendung des eNMPC für komplexere Anlagentopologien einer ASU zu ermöglichen.

In CASPARI ET AL. (2019a) wird die suboptimal fast-update method mit einem direkten Schießverfahren, engl.: *direct single-shooting*, kombiniert. Dabei handelt es sich um eine Methode, ein Randwertproblem über Anfangswertprobleme zu approximieren und zu lösen. Weitere Informationen dazu können ARENS ET AL. (2018) entnommen werden. Bei der Integration des Gleichungssystems aus differentiell-algebraischen Gleichungen, engl.: *differential-algebraic equations* (DAE), kann somit das Gleichungssystem des Anlagenmodells innerhalb des Optimierungsalgorithmus gelöst werden. Dadurch kann

garantiert werden, dass die Modellgleichungen während einer Iteration des Optimierungsalgorithmus exakt gelöst werden und durch die suboptimal fast-update method keine unphysikalischen Lösungen entstehen. Das Optimierungsproblem mit ökonomischer Zielfunktion wird dabei wiederholt online während des (in silico) Anlagenbetriebs unter Berücksichtigung eines variablen Zeithorizonts gelöst. Hier wird das vom AVT.SVT entwickelte Optimierungsframework *DyOs* verwendet [DyOs 21.02.2022].

Am Beispiel einer ASU mit O_2 - und N_2 -Produktion wird gezeigt, dass bei einer Betrachtung eines Zeitraums von 24 h gegenüber einem stationären Betrieb unter Einhaltung der vorgegebenen Randbedingungen für z.B. Produktmengen und Reinheiten bis zu 4 % Kosteneinsparungen erzielt werden können. Dabei gilt es zu betonen, dass es sich um ein rigoroses Anlagenmodell handelt, welches in Echtzeit optimiert wird. Darauf aufbauend wird in CASPARI ET AL. (2019b) die Anlagentopologie weiter modifiziert sowie der betrachtete Zeitraum für den eNMPC auf 48 h erweitert. Dies ermöglicht Kosteneinsparungen von 14 % gegenüber dem stationären Betrieb der Anlage.

Im Gegensatz dazu verwenden SCHÄFER ET AL. (2019b) Modellreduktion, um den Rechenaufwand für die Verwendung des eNMPC zu verringern. Eine detaillierte Literaturübersicht über Modellreduktionsansätze findet sich in Abschnitt 3.2.3 wieder. In SCHÄFER ET AL. (2019b) wird das Beispiel einer ASU mit reiner N_2 -Produktion aus CASPARI ET AL. (2018) betrachtet. Für die dynamische Optimierung wird ein Schießverfahren analog zu CASPARI ET AL. (2019a) verwendet. Dem Regelmodell, welches mittels eNMPC optimiert wird, liegt hier jedoch ein reduziertes Modell der Rektifikationskolonne zugrunde. In dieser Studie wird ein hybrider Ansatz aus mechanistischer und datengetriebener Modellreduktion betrieben. Ein Ergebnis dieser Studie ist, dass trotz der durch die Verwendung von reduzierten Modellen entstehenden Abweichung zwischen Regel- und rigorosem Modell, engl.: *plant-model mismatch*, bei der Betrachtung von Betriebsstörungen Einsparungen gegenüber dem stationären Betrieb erzielt werden können.

Ein weiterer Modellreduktionsansatz wird in CASPARI ET AL. (2020c) unter Verwendung des gleichen Anlagenbeispiels entwickelt. Hier werden die beiden Ansätze der nichtlinearen Wellenverbreitungstheorie, engl.: *nonlinear wave propagation theory* (NWT), und der Kompartiment-Modellierung zum transienten Wellenverbreitungsmodell, engl.: *transient wave propagation model* (TWPM), kombiniert, um so die Dynamik von Lastwechselvorgängen besser abbilden zu können. Verglichen mit dem hybriden Modellreduktionsansatz aus SCHÄFER ET AL. (2019a) eignet sich dieser Ansatz neben der ökonomisch optimalen Regelung von Betriebsstörungsszenarien auch für einen lastflexiblen Betrieb. SCHULZE ET AL. (2021) wenden diesen Ansatz auf eine ASU mit hochreinem N_2 (mit Verunreinigungen im ppb Bereich) an und zeigen, dass auch diese hohen Reinheitsanforderungen bei der dynamischen Optimierung mit reduzierten Modellen eingehalten werden können. Eine Zusammenfassung der Neuerungen für eine ökonomisch optimale Betriebsführung für ASUs ist der Dissertation von CASPARI (2021) zu entnehmen. Darüber hinaus ist in CASPARI ET AL. (2020d) eine Übersicht über die beiden Paradigmen zur Integration von DSM und Anlagenregelung zu finden.

Wie in dieser Übersicht über komplexe Regelungsstrategien für einen ökonomisch optimalen Betrieb von ASUs unter fluktuierenden Strompreisen zu erkennen ist, liefert die dynamische Simulation die Grundlage für den bottom-up-Ansatz zur Integration von Betriebsplanung und Regelung (siehe Abbildung 3.8 *Level 3 in Level 2*). Die größte Herausforderung hierbei ist die Anforderung der zu lösenden dynamischen Optimierungsaufgabe an die Echtzeitfähigkeit. Ein stetiges Bestreben der Entwicklungen der letzten Jahre ist es dabei, die Komplexität des Regelmodells weiter zu erhöhen, um die Güte der resultierenden Sollwertvorgaben für die Basisregelung, unter der Prämisse der Echtzeitfähigkeit, zu verbessern. Bezüglich Abbildung 3.6 sind Regelmodelle im rechten oberen Bereich zwischen der Betriebsstrategie und dem DSM einzuordnen.

Zwei gängige Methoden für diesen Zweck sind einerseits die Weiterentwicklung der verwendeten Algorithmen bei der Formulierung und Lösung des Optimierungsproblems sowie die Verwendung von Modellreduktionsansätzen für rechenintensive verfahrenstechnische Grundoperationen wie z.B. Rektifikationskolonnen, um einen Kompromiss zwischen notwendiger Genauigkeit und benötigter Rechenzeit zu finden. Die drei in der Literatur gängigen Ansätze werden in Abschnitt 3.2.3 detailliert erläutert.

3.2.3 Modellreduktion für Rektifikationskolonnen – Kompromiss zwischen Genauigkeit und Rechenzeit

Die grundlegende Idee von Modellreduktionsansätzen ist es, den benötigten Rechenaufwand bei der Gewährleistung der für die entsprechende Aufgabe notwendigen Vorhersagegenauigkeit zu reduzieren [ROMIJN ET AL. 2008]. Bezogen auf die Automatisierungspyramide in Abbildung 3.8 sind die Modellreduktionsansätze als Bindeglied zwischen der MPC-Ebene (*Level 2*) und den Ebenen der Basisregelung (*Level 1*) und der ASU (*Level 0*) einzugliedern.

Bei der Betrachtung von ASUs ist die Modellreduktion der Rektifikationskolonnen aufgrund der hohen Anzahl an theoretischen Trennstufen, die zur Trennung der Luft in die drei Hauptkomponenten notwendig sind, am wirksamsten. Die drei typischen Ansätze in der Literatur sind nach SKOGESTAD (1997):

- nichtlineare Wellenverbreitungstheorie, engl.: *nonlinear wave propagation theory*,
- Kompartiment-Modellierung, engl.: *compartment modeling*,
- orthogonale Kollokation, engl.: *orthogonal collocation*.

Die NWT, u.a. von GILLES & RETZBACH (1980) eingeführt, ist seit mehreren Jahrzehnten Gegenstand der Forschung. Da für nicht-ideale Gemische größere Abweichungen im Vergleich zu rigorosen Modellen auftreten, wurde dieser Ansatz von KIENLE (2000) bezüglich einer generalisierten Anwendung für Mehrkomponentensysteme überarbeitet. Anwendungen im Bereich ASU sind z.B. in ZHU ET AL. (2001) oder BIAN ET AL. (2005a) zu finden. Das Ergebnis der Betrachtungen ist, dass ohne Anpassungen z.B. der Wellenform größere Abweichungen zwischen rigorosem und reduzierten Modell zu sehen sind. Daher wurde dieser Ansatz von CASPARI ET AL. (2020c) (siehe Abschnitt 3.2.2)

zum TWPM weiterentwickelt. Dabei gelten folgende Annahmen: es wird eine dynamische Massenbilanz mit einer (linearen) Ausflussbeziehung verwendet, um den Kolonnenholdup mit der ausströmenden Flüssigkeit zu korrelieren, was zu einem physikalischeren Verhalten während Lastwechselfvorgängen führen soll. Hierfür werden quasistationäre Beziehungen zur Beschreibung der Holdups und der austretenden Ströme verwendet. Zusätzlich werden die Gleichungen zur Beschreibung der Wellen aus verschiedenen stationären Grenzfällen abgeleitet, die den Gültigkeitsbereich (Lastbereich) der Wellen definieren. Außerdem wird eine quasi-stationäre Propagation der Enthalpie sowie ein vernachlässigbarer Holdup der Gasphase angenommen. Dadurch wird der NWT-Ansatz mit der Idee der Kompartiment-Modellierung kombiniert und vielversprechende Ergebnisse für die Anwendung des eNMPC auf eine ASU generiert.

Der Ansatz der Kompartiment-Modellierung wurde erstmals von BENALLOU ET AL. (1986) in der Literatur publiziert. Als Grundlage für diesen Ansatz wird ein rigoroses Stufe-zu-Stufe Modell einer Rektifikationskolonne verwendet. Diese wird dann in eine bestimmte Anzahl an Kompartimenten unterteilt, welche mehrere (theoretische) Trennstufen repräsentieren. Da das dynamische Verhalten von einzelnen (theoretischen) Trennstufen verglichen mit einem entsprechend großen Kompartiment auf kürzeren Zeitskalen stattfindet, ist es ausreichend, lediglich das Kompartiment dynamisch zu bilanzieren. Für die Beschreibung der Einzelstufen sind daher algebraische Gleichungen ausreichend. Die Anzahl und Größe der Kompartimente ist eine Abwägung zwischen benötigtem Rechenaufwand und notwendiger Simulationsgenauigkeit. Dieser Ansatz wird bei der Entwicklung von NMPC-Strategien für eine ASU mit reiner N_2 -Produktion [KHOWINI ET AL. 2005] sowie einer isolierten Linde Doppelkolonne verwendet [BIAN ET AL. 2005b, CHEN ET AL. 2010]. Eine wichtige Erkenntnis dieser Studien ist, dass durch das Verwenden von Kompartimenten die Größe des Gleichungssystems und dadurch die benötigte Rechenzeit reduziert werden kann (siehe Studie zur N_2 -Aufreinigung in KHOWINI ET AL. (2005)). Dies bringt jedoch nicht zwingend einen Vorteil, wie der Reduktion der Niederdruckkolonne in BIAN ET AL. (2005b) zu entnehmen ist. Wie bereits bei der Beschreibung der Literatur des eNMPC erwähnt, erweitern SCHÄFER ET AL. (2019a) diesen Ansatz durch die Verwendung von ANN zur vereinfachten Beschreibung von algebraischen, größtenteils nichtlinearen Beziehungen zwischen Eingangs- und Ausgangsgrößen, um die Anzahl an Gleichungen weiter zu reduzieren. In SCHÄFER ET AL. (2019b) wird dieser Ansatz unter Verwendung einer eNMPC auf eine ASU angewendet.

Der dritte klassische Ansatz, die orthogonale Kollokation, verwendet Polynome niedriger Ordnung, welche die Zustände in einer Rektifikationskolonne beschreiben. Durch eine vorgegebene Anzahl an Stützstellen können die typischen Berechnungsgrößen von theoretischen Trennstufen, z.B. der austretende Komponentenmolenstrom, durch Polynome angenähert werden. Eine genaue Beschreibung dieses Vorgehens ist WONG & LUUS (1980) zu entnehmen. Dieses Vorgehen wird bevorzugt in der publizierten Literatur der Forschungsgruppe um *Cao et al.* im Kontext von ASUs verwendet. Ein Beispiel hierfür ist die Anwendung der orthogonalen Kollokation auf sämtliche Kolonnen einer ASU mit Ar-System ausgenommen der Niederdruckkolonne in CAO ET AL. (2016a). Die

Bestimmung der Polynomkoeffizienten erfolgt über eine Minimierung der Abweichung des vereinfachten Modells im Vergleich zu den Simulationsergebnissen eines rigorosen Anlagenmodells, welches als Trainingssimulator, engl.: *operator training system* (OTS), verwendet wird. Anhand von verschiedenen dynamischen Studien wird die Güte des Ansatzes evaluiert mit dem Ergebnis, dass die Rechenzeit im Vergleich zur rigorosen Modellierung bis zu 63% reduziert werden kann, jedoch größere Modellfehler und geänderte Prozessbedingungen auftreten können, da keine physikalische Extrapolation der Polynomfunktionen gegeben ist.

Die Gemeinsamkeit der betrachteten Ansätze besteht darin, dass initial ein dynamisches Modell einer Rektifikationskolonne vorhanden sein muss, welches entsprechend reduziert werden kann. Die Notwendigkeit der Entwicklung solcher Ansätze resultiert aus der Bedingung an die Echtzeitfähigkeit bei der dynamischen Optimierung von Regelmodellen (siehe Abschnitt 3.2.2).

Im folgenden Abschnitt wird die Modellgranularität der verwendeten Modelle weiter erhöht und eine Übersicht über die Literatur der Anwendungsmöglichkeiten von rigorosen dynamischen Modellen komplexer ASU-Topologien gegeben.

3.3 Dynamische Simulation von Luftzerlegungsanlagen

Die Anwendung von rigorosen dynamischen Modellen von ASUs kann in drei für diese Arbeit relevante Forschungsgebiete unterteilt werden, die in der Literatur zu finden sind. Als Erstes wird genauer auf die Analyse und die Verbesserung von einzelnen Lastwechsellvorgängen eingegangen. In Abbildung 3.6 ist dies im linken oberen Bereich zwischen ASU und Betriebsstrategien einzuordnen. Dazu ist es vorteilhaft, detaillierte Anlagenmodelle zu verwenden, die in die Kategorie virtuelle ASU fallen, welche durch die höchste verfügbare Modellgranularität charakterisiert ist. Diese Modellart wird ebenfalls für das zweite relevante Forschungsgebiet, den dynamischen Designstudien, verwendet. Diese Kategorie findet sich in der Verknüpfung von Betriebsstrategie und Equipmentdesign wieder. Bei der dritten relevanten Thematik handelt es sich um die druckgetriebene Modellierung. Im Gegensatz zur konventionellen strömungsgetriebenen Prozesssimulation, bei der die Werte für Mengenströme als Randwerte für Anlagen- oder Equipmentmodelle dienen, werden hier Drücke und Widerstandsbeiwerte vorgegeben. Das erlaubt die Interpretation des Modells als Drucknetzwerk, bei dem sich die Mengenströme entsprechend der Druckdifferenzen einstellen, was einem realitätsgetreuen Abbild des modellierten Prozesses entspricht. Wird wieder die Automatisierungspyramide in Abbildung 3.8 betrachtet, repräsentiert die dynamische Simulation die Ebenen der Basisregelung (*Level 1*) und der ASU (*Level 0*). Somit ist die höchste Modellgranularität erreicht.

Analysen von Lastwechsellvorgängen von ASUs wurden bereits mehrfach in der Literatur publiziert. Untersuchungen zum optimalen Lastwechselverhalten einer ASU mit Ar-Produktion werden bereits von ENGL ET AL. (1999) und KRÖNER ET AL. (2001) vorgestellt. Dazu werden mit einem rigorosen Anlagenmodell Lastverschiebungen in

einem Lastbereich von 60 - 100 % mittels Schießverfahren optimiert, um die Produktausbeute zu maximieren. Diese Forschungsgruppe hat darauf basierend in der Arbeit von KRONSEDER (2003) einen Ansatz für eine NMPC für eine ASU mit Argonsystem entwickelt. In CAO ET AL. (2011) wird ein rigoroses Detailmodell einer ASU zur reinen N_2 -Produktion hinsichtlich Limitierungen von Lastwechselgeschwindigkeiten untersucht. Dazu wird ein zweistufiger Optimierungsansatz angewendet. Im ersten Schritt wird durch eine stationäre Optimierung ein ökonomisch optimaler Betriebspunkt gefunden. In einem zweiten Schritt wird mittels dynamischer Optimierung ein optimaler Lastwechselvorgang bestimmt mit dem Ziel, die Lastwechseldauer zu minimieren. Beide Optimierungsprobleme müssen dabei Randbedingungen bezüglich geforderter Produktreinheiten und weiteren komponentenspezifischen Vorgaben erfüllen. Als Beispiel wird hier eine Lasterhöhung von 20 % betrachtet, die mittels optimierter Lastveränderung innerhalb von 17.4 min erreicht wird. Eine Erkenntnis dabei ist, dass ein potentielles Fluten in der Kolonne als limitierender Faktor für die Lastwechselgeschwindigkeit identifiziert wird. In CAO ET AL. (2016b) wird diese Studie durch eine Modifikation der modellierten Anlagentopologie durch einen flüssigen Produkttank sowie der Betrachtung mehrerer nachgeschalteter Lastwechselvorgänge erweitert. Dabei werden für diesen Fall Engpässe identifiziert, engl.: *bottleneck identification*, die den Lastbereich sowie die Lastwechselgeschwindigkeit einschränken.

In CAO ET AL. (2017) wird untersucht, ob vorgezogene Stellgrößenänderungen, engl.: *preemptive loadchange*, sich vorteilhaft auf einen Lastwechselvorgang einer ASU mit Ar-Produktion auswirken, da diese ASU-Topologie durch den hohen Grad an Prozess- und Wärmeintegration in ihrem Flexibilitätspotential limitiert ist. Hierfür wird das teilweise durch orthogonale Kollokation reduzierte Anlagenmodell nach CAO ET AL. (2016a) verwendet. Das Lastwechselverhalten wird in mehreren Studien am Beispiel von Lastverschiebungen der GOX-Produktmenge um 10 % in beide Richtungen untersucht und dynamisch optimiert. Erkenntnis dieser Studie ist unter anderem die Tatsache, dass sich das Verschieben der Flüssigholdups des Sumpfs der Druckkolonne in den Rohargon-Verdampfer/Kondensator und weiter in die Niederdruckkolonne während des Lastwechsels als vorteilhaft gestaltet. Ein weiteres Ergebnis dieser Betrachtungen ist, dass sich durch vorgezogene Stellgrößenänderungen während des Lastwechsels Betriebszustände einstellen, welche sich näher an den Betriebsgrenzen der Anlage befinden.

Für einen lastflexiblen Betrieb von ASUs ist es jedoch interessant, den gesamten Betriebsbereich der Anlage modelltechnisch abbilden zu können, um so Einblick über Extremszenarien wie Anlagenstopps und (Wieder-) Anfahrvorgänge und deren Auswirkungen und Limitierungen zu bekommen. Für detaillierte Einblicke in diese Szenarien wurde von WUNDERLICH (2018) ein druckgetriebenes dynamisches Modell einer Linde Doppelkolonne entwickelt. Unter anderem wurde hier das transiente Verhalten der Linde Doppelkolonne während Lastwechselvorgängen, Anfahrvorgängen aus dem warmen Anlagenzustand sowie eines Anlagenstopps und eines darauf folgenden Wiederanfahrvorgangs untersucht. Weitere Studien diesbezüglich wurden von CASPARI ET AL. (2020b) und CASPARI ET AL. (2020a) durchgeführt. Dabei wird ein Schießverfahren für die

Optimierung von Anfahrvorgängen einer einzelnen, vereinfachten HPC und einer ASU zur reinen N_2 -Produktion durchgeführt. Eine Erkenntnis dabei ist, dass bei einer Rückeinspeisung von LIN aus einem Produkttank in die HPC die Anfahrzeit um bis zu 70 % reduziert werden kann. Jedoch ist zu erwähnen, dass die Modellgranularität der hier verwendeten Modelle geringer als bei WUNDERLICH (2018) ist.

Bezüglich dynamischer Designstudien ist auf die Arbeit von MILLER ET AL. (2008) zu verweisen. Hier wird als Beispielszenario ein Wiederanfahrvorgang nach einem Anlagenstopp eines rigorosen Modells einer ASU mit Ar-System betrachtet. Zur Verkürzung von Produktwechsel- und Anfahrzeiten werden konstruktive Verbesserungen am Ar-System vorgeschlagen. Durch eine zusätzliche Integration von einem oder mehreren Speicherbehältern kann der flüssige Rücklauf der Rohargonkolonne aufgefangen und beim Wiederanfahren verzögert zurück in die Anlage gefördert werden. Für den Transfer der Flüssigkeiten zurück in das Ar-System wird der Speicherbehälter über den Hauptluftverdichter mit Druck beaufschlagt. Durch die Anbringung von sechs zusätzlichen Speicherbehältern kann die Dauer für das Wiederanfahren der Anlage von 10 h auf 2.2 h reduziert werden.

Ein weiteres Beispiel für dynamische Designstudien ist in CAO ET AL. (2015) zu finden. Basierend auf dem Beispiel von CAO ET AL. (2011) werden Designmodifikationen vorgenommen, um deren Einfluss auf Lastwechselforgänge zu untersuchen. Analog zu MILLER ET AL. (2008) stellt sich heraus, dass die Verwendung von externer Flüssigkeit, hier durch die Anbringung eines zusätzlichen LIN-Produkt tanks und die Rückeinspeisung in die Kolonne, während des Lastwechsels vorteilhaft ist. Darüber hinaus wurde eine direkte Rezirkulation der Luft am Hauptluftverdichter von der Saug- zur Druckseite betrachtet, welche jedoch keinen merklichen Mehrwert auf eine Verbesserung von Lastwechselgeschwindigkeiten zeigt.

Das im Rahmen der Dissertation von WUNDERLICH (2018) entwickelte Modell der Linde Doppelkolonne basiert auf einem generischen Modellierungsansatz für die Darstellung von druckgetriebener Strömung, welcher in THOMAS ET AL. (2020) publiziert worden ist. Ein großer Vorteil dieses Ansatzes ist, dass abhängig von der anliegenden Druckdifferenz zwischen zwei benachbarten Volumina mit Fluidinhalt, sog. Druckknoten, die Strömungsrichtung der angrenzenden Ströme bestimmt wird. So ist es möglich, Vorwärts-, Rückwärts- sowie Nullströmungsszenarien abzubilden. Diese Eigenschaft erlaubt es, Extremszenarien wie Anlagenstopps und (Wieder-) Anfahrvorgänge mit höchstmöglicher Präzision abzubilden. Die Verwendung dieses Ansatzes erlaubt die Interpretation des entwickelten Modells der Linde Doppelkolonne als Drucknetzwerk, was dazu führt, dass die Fluidodynamik innerhalb der Kolonnen möglichst realitätsgetreu und hochdetailliert aufgelöst werden kann. Dies ermöglicht eine genauere Untersuchung der Auswirkungen von Lastwechsel- und Störszenarien auf die Kolonnenfluidodynamik sowie deren Einfluss auf die Trennleistung, was für hochintegrierte Prozesse wie eine Linde Doppelkolonne einer ASU von großem Vorteil ist. In einem ersten Schritt können dabei Engpässe bei Lastwechselforgängen identifiziert und im zweiten Schritt beseitigt werden. Bei allen bisher beschriebenen Modellen für dynamische Designstudien wird hier die höchste Modellgranularität verwendet.

Wie in dieser Literaturübersicht über die notwendigen Aspekte für einen lastflexiblen Betrieb einer ASU im Rahmen eines erfolgreichen DSM zu erkennen ist, gibt es eine Vielzahl an unterschiedlichen Simulationsmodellen, die abhängig von den Anforderungen der entsprechenden Aufgaben unterschiedliche Modellgranularitäten aufweisen. Die Einschränkungen in der verwendeten Modellgranularität resultieren dabei aus den Anforderungen der entsprechenden Aufgaben an die möglichen Berechnungszeiten. Eine Reduktion der Modellgranularität ist oftmals nur deswegen notwendig, weil hochdetaillierte dynamische Anlagenmodelle in zu großen und komplexen Gleichungssystemen für die entsprechenden Berechnungsaufgaben (z.B. dynamische Optimierung) resultieren. Ein Großteil der publizierten Literatur dient dazu, trotz vereinfachter Implementierung des Modells einen möglichst hohen Informationsgehalt beizubehalten, um die Güte der resultierenden (Optimierungs-) Ergebnisse so hoch wie möglich zu halten. Hochdetaillierte Anlagenmodelle werden meist nur in offline Studien verwendet. Deren Ergebnisse fließen dann in vereinfachter Form, z.B. als Nebenbedingung für eine maximale Lastwechselgeschwindigkeit, in online Anwendungen mit geringer Modellgranularität ein, die im Gegenzug einen Rechenaufwand aufweisen, welcher Berechnungen oder Optimierungen in Echtzeit zulässt. Jedoch ist die Verwendung von multiplen Modellen zur Beschreibung eines Prozesses mit hohem Implementierungs- und Wartungsaufwand verbunden. Daher wird im folgenden Abschnitt die Technologie des DTs vorgestellt, die dabei hilft, die verschiedenen Modellgranularitäten in einem Gesamtmodell zu integrieren. Teile der nachfolgenden Literaturrecherche sind aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2021a) entnommen, welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

3.4 Digitaler Zwilling – Digital Twin

Der Begriff digitaler Zwilling, engl.: *digital twin*, wird oftmals im Kontext von *Digitalisierung* und *Industrie 4.0* verwendet. Jedoch handelt es sich dabei um einen sehr weit gefassten Begriff, der über die Jahre in der Literatur verschiedene Definitionen und Interpretationen erfahren hat. Eine der ersten Definitionen des Konzepts des DT stammt von der *National Aeronautics and Space Administration* (NASA). In SHAFTO ET AL. (2010) und SHAFTO ET AL. (2012) wird ein DT als: „*an integrated multi-physics, multi-scale, probabilistic, simulation of a vehicle or system that uses the best available physical models, sensor updates, fleet history, etc., to mirror the life of its flying twin. It is ultra-realistic and may consider one or more important and independent vehicle systems*“ definiert. Die ursprüngliche Definition des Begriffs DT beinhaltet also ein Modell, welches in der Lage ist, den gesamten Lebenszyklus, engl.: *life cycle*, eines Fluggeräts abzubilden, mittels hochdetaillierten - „*the best available*“ - physikalisch basierten Simulationsmodellen sowie der Nutzung von historischen Daten des realen Zwillings, um Informationen über die Interaktionen des betrachteten Fluggeräts mit seiner Umgebung zu berücksichtigen.

Darüber hinaus wird der Begriff des DT oftmals in der Fertigungsindustrie verwendet. Hier wird der Begriff DT vom Konzept der virtuellen Fabrik, engl.: *virtual factory*, abgeleitet. Eine virtuelle Fabrik ist definiert als deren virtuelle Repräsentation, die in die Produktionsabläufe des realen Systems integriert ist und zur Unterstützung der Produktion verwendet wird. Ein Nachteil dieses Konzepts ist, dass die während der einzelnen Phasen des Lebenszyklus gesammelten Daten der Fabrik nicht phasenübergreifend genutzt werden. Um diese Beeinträchtigung zu beheben, wurde das virtuelle Fabrik Framework, engl.: *virtual factory framework*, durch SACCO ET AL. (2010) vorgestellt. Hier werden die gesammelten Daten während des gesamten Lebenszyklus der Fabrik genutzt, um diese vorteilhaft bei der Planung, dem Betrieb, der Bewertung sowie der Neukonfiguration neuer oder bestehender Anlagen einzusetzen. Die virtuelle Fabrik ist jedoch nicht für Echtzeitanwendungen ausgelegt. Daher geht das Konzept des DT über den Rahmen der virtuellen Fabrik hinaus, indem es die Funktion der Echtzeitsynchronisation mit dem physischen System beinhaltet, die eine Optimierung der aktuellen und zukünftigen Produktion ermöglicht [TERKAJ & URGO 2014].

Eine weitere Definition des Begriffs DT in der Fertigungsindustrie findet sich in GARETTI ET AL. (2012). Darin heißt es, dass der DT aus einer virtuellen Darstellung eines Produktionssystems besteht, welche multiple Simulationsdisziplinen ausführen kann und eine Synchronisation zwischen dem virtuellen und dem realen System etabliert. Dies wird durch die Nutzung von intelligenter Sensorik, den dadurch gewonnenen Daten sowie der Implementierung von mathematischen Modellen zur Prozessbeschreibung und zur Datenverarbeitung in Echtzeit ermöglicht. Die Rolle des DT innerhalb von Fertigungssystemen im Kontext von Industrie 4.0 besteht folglich darin, diese Eigenschaften zu nutzen, um das Verhalten des Produktionssystems in jeder Lebenszyklusphase in Echtzeit vorherzusagen und optimieren zu können [GARETTI ET AL. 2012]. Für weitere Informationen zur Definition des Begriffs des DT, auch über den Fachbereich der Fertigungsindustrie hinaus, ist auf die Übersichten von NEGRI ET AL. (2017) und KRITZINGER ET AL. (2018) und deren Sekundärliteratur zu verweisen. Jedoch wird in den meisten Industriezweigen häufig auf die Definition des DT aus der Fertigungsindustrie zurückgegriffen.

In der Verfahrenstechnik wird der Begriff des DT ebenfalls häufig verwendet, ist aber in der Literatur noch nicht definiert worden. Nur in wenigen Publikationen wird der Begriff explizit erwähnt. MIN ET AL. (2019) stellen beispielsweise einen datengetriebenen DT für die Optimierung von petrochemischen Anlagen vor mit dem Fokus auf der Implementierung und Nutzung von maschinellem Lernen. MARTINEZ ET AL. (2018) legen den Fokus auf *simulationsbasierte* DT. Diese basieren auf rigorosen Modellen von Anlagen oder verfahrenstechnischen Grundoperationen, die echtzeitfähig sind und somit online während des Betriebs eingesetzt werden können. Diese Verwendung solcher Modelle ist jedoch bereits seit Jahrzehnten unter dem Begriff der online modellbasierten Anwendungen, engl.: *online model-based applications*, bekannt. Für detaillierte Informationen zu dieser Thematik ist auf die Übersicht von PANTELIDES & RENFRO (2013) zu verweisen. In einer Übersicht von TSAY ET AL. (2018b) werden Möglichkeiten des optimalen Prozessdesigns in der (petro-) chemischen Industrie diskutiert mit dem

Schluss, dass Informationen aus dem Betrieb in das Anlagendesign einfließen sollten, um dieses weiter zu optimieren. Dafür wird ein DT benötigt, welcher in der Lage ist, sowohl das Anlagendesign als auch den Betrieb abbilden zu können. Darüber hinaus bieten bekannte Anbieter von Prozesssimulationssoftware wie Aspentech [ASPENTECH 25.08.2022], Aveva [AVEVA 25.08.2022], Honeywell [HONEYWELL 25.08.2022] oder Process Systems Enterprise DT-Technologien für verfahrenstechnische Anlagen an. Als Beispiel dafür kann der Zusammenschluss von Siemens und Process Systems Enterprise genannt werden, welcher ein DT-Konzept für neue oder Bestandsanlagen kommerziell anbietet. Dieser DT soll in der Lage sein, den gesamten Lebenszyklus einer chemischen Anlage abzubilden und zu optimieren [SIEMENS 25.08.2022].

Zusammenfassend ist der DT durch zwei Merkmale charakterisiert: die Möglichkeit, den kompletten Lebenszyklus einer (verfahrenstechnischen) Produktionsanlage abbilden zu können sowie einen bidirektionalen Datentransfer zwischen Anlage und Modell zu ermöglichen. Nach SCHLEICH ET AL. (2017), HEHENBERGER & BRADLEY (2016) und ROSEN ET AL. (2015) ist die Aufgabe eines DT, die Realanlage nicht nur virtuell zu repräsentieren, sondern auch das Verhalten des physischen Zwillings während des kompletten Lebenszyklus optimieren zu können. Diese Eigenschaften decken sich ebenfalls mit der Definition des Vereins Deutscher Ingenieure e.V. (VDI) für einen DT [VDI 2022].

Um die geforderten Funktionalitäten des DT zu ermöglichen, ist ein innovatives Software-Framework erforderlich. Dieses sollte in der Lage sein, eine inhärente Schnittstellenkommunikation mit der Realanlage zu gewährleisten, die daraus gewonnenen Daten speichern und verarbeiten zu können sowie ein Simulations-Framework zu bieten, welches die verschiedenen Simulationsmethoden und Werkzeuge für eine multidisziplinäre Darstellung der Realanlage beinhaltet [NEGRI ET AL. 2017].

Im Rahmen dieser Arbeit sollen basierend auf der virtuellen ASU die Anforderungen an einen DT für ASUs definiert werden. Die Definition soll beinhalten, welche Modelle bzw. Modellgranularitäten zu den unterschiedlichen Phasen des Lebenszyklus benötigt und wie diese in den DT integriert werden können. Dabei wird ein top-down-Ansatz verfolgt. Darüber hinaus sollen konkrete Anwendungen von DTs gezeigt werden, die einen (un-) mittelbaren Mehrwert für einen energieeffizienten, lastflexiblen Betrieb von ASUs beinhalten.

4 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen für das entwickelte Konzept des DT präsentiert. Zunächst wird der Begriff des DT und dessen Anforderungen für verfahrenstechnische Anlagen am Beispiel einer ASU konkretisiert. Weiter wird der allgemeine Aufbau des zugrunde liegenden Simulationsmodells, der virtuellen ASU, vorgestellt. Darüber hinaus werden die Annahmen des verwendeten Simulationsansatzes präsentiert, bevor die grundlegenden Gleichungen für die entwickelten Modelle der verfahrenstechnischen Grundoperationen vorgestellt werden.

4.1 Entwicklung und Definition des digitalen Zwillings für eine lastflexible Luftzerlegungsanlage

Ein DT einer verfahrenstechnischen Anlage besteht aus den drei Grundbestandteilen: reale Anlage, Simulationsmodell (virtuelle ASU) und entsprechender Simulationsinfrastruktur (mit inhärenter Möglichkeit zur Datenverarbeitung), welche in Abbildung 4.1 dargestellt sind. Diese ermöglichen es, einen bidirektionalen Datentransfer zwischen Modell und Anlage zu etablieren sowie den gesamten Lebenszyklus einer ASU abzubilden. Der nachfolgende Abschnitt enthält Teile aus den Artikeln von KENDER ET AL. (2021a), KENDER ET AL. (2022b), KENDER ET AL. (2022a) und KENDER ET AL. (2023), welche bereits in Fachjournalen veröffentlicht wurden.

Zunächst wird eine reale Anlage, die physische Entität des Zwillings, benötigt, welche modellseitig abgebildet werden soll. Weiter erfordert der DT ein Modell dieser Anlage, die virtuelle ASU. Deren Aufbau und Eigenschaften werden in Abschnitt 4.1.2 vorgestellt. Darüber hinaus wird eine Infrastruktur benötigt, welche es erlaubt, Anlage und Modell zu koppeln, die entsprechenden Daten zu verarbeiten und in die jeweilige Richtung zu übertragen. So können die Betriebsdaten der Messstellen als Input für die virtuelle ASU verwendet und optimierte Stellgrößen für einen energieoptimalen Betrieb zurück an die Anlage gegeben werden. Somit kann der laufende Anlagenbetrieb sowie das Anlagenmodell verbessert werden. Dazu wird die Linde proprietäre Simulationsinfrastruktur *Simulation Model Infrastructure @ Linde Engineering* (SMI@LE) verwendet, welche in Abschnitt 5.1 präsentiert wird. SMI@LE ist sowohl die Modellierungsumgebung für die Entwicklung der Simulationsmodelle als auch eine Plattform für die Implementierung von Schnittstellen zwischen realer Anlage und virtueller ASU. Zusätzlich ist auch eine Kopplung an eine Anlagendatenbank möglich. Dies erlaubt es, den DT in on- oder offline Applikationen zu verwenden.

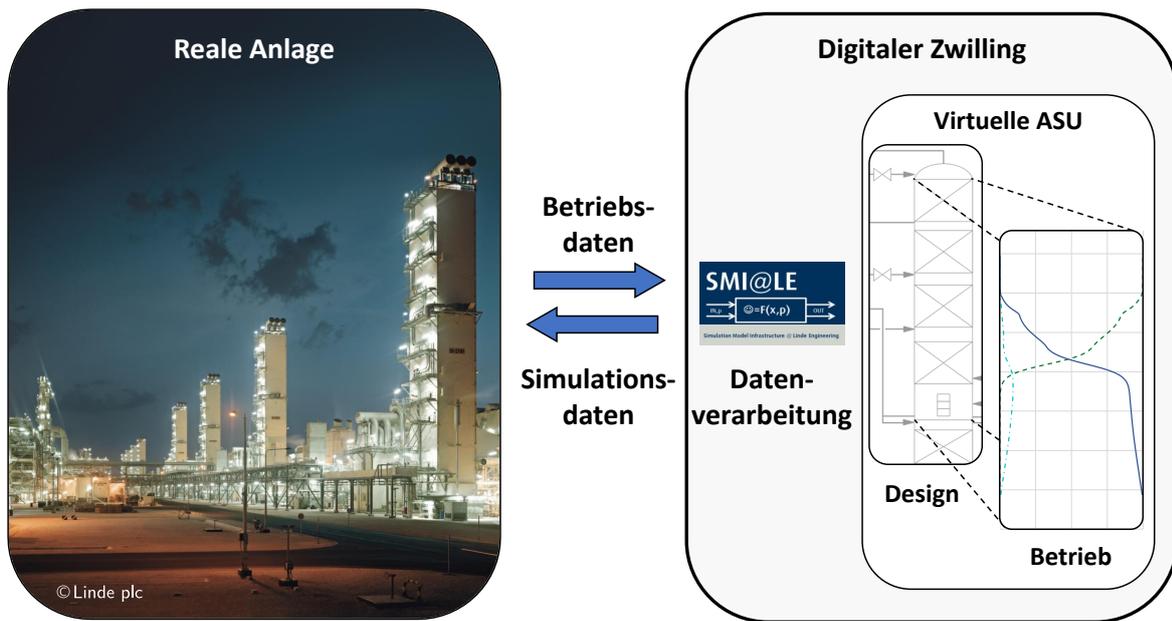


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des DT-Konzepts einer ASU nach KENDER ET AL. (2021a)

Eine weitere Anforderung an den DT ist es, den gesamten Lebenszyklus einer ASU abbilden zu können. Dieser kann im Allgemeinen in zwei Phasen, die *Design-* und die *Betriebsphase*, eingeteilt werden, welche unterschiedliche Simulationsdisziplinen benötigen. Während für das Design von konventionell betriebenen Anlagen bisher weitestgehend die stationäre Simulation verwendet wird, dominieren dynamische Betrachtungen zur Unterstützung des Betriebs. Die beiden Abschnitte können weiter in unterschiedliche Stufen unterteilt werden. Ein typischer Lebenszyklus einer ASU wird in Abbildung 4.2 dargestellt.

Generell kann der Anlagenlebenszyklus in sechs Stufen unterteilt werden: *Ausschreibungsbewerbung*, *Prozess- und Equipmentdesign*, *Dynamisches Design*, *Inbetriebnahme*, *Betriebsoptimierung* sowie *F&E Anwendungen*. Nachfolgend wird detailliert auf die unterschiedlichen Stufen eingegangen, wobei der Fokus auf der benötigten Modellgranularität der Simulationsmodelle liegt, die in der jeweiligen Stufe benötigt werden.

Stufe 1 – Ausschreibungsbewerbung

Zu Beginn eines Anlagenlebenszyklus steht die Ausschreibungsbewerbung. Dabei werden je nach Möglichkeit entweder Shortcut-Modelle oder größtenteils stationäre Prozesssimulation für die Angebotserstellung genutzt. Bei stationären Shortcut-Modellen handelt es sich um die größte Modellgranularität.

Stufe 2 – Prozess- und Equipmentdesign

Bei der zweiten Stufe handelt es sich um das Prozess- und Equipmentdesign. Hierbei werden hochdetaillierte stationäre Modelle für die thermofluiddynamische Auslegung des Prozesses und des Equipments verwendet. Das Ziel dieser Stufe ist, sowohl den

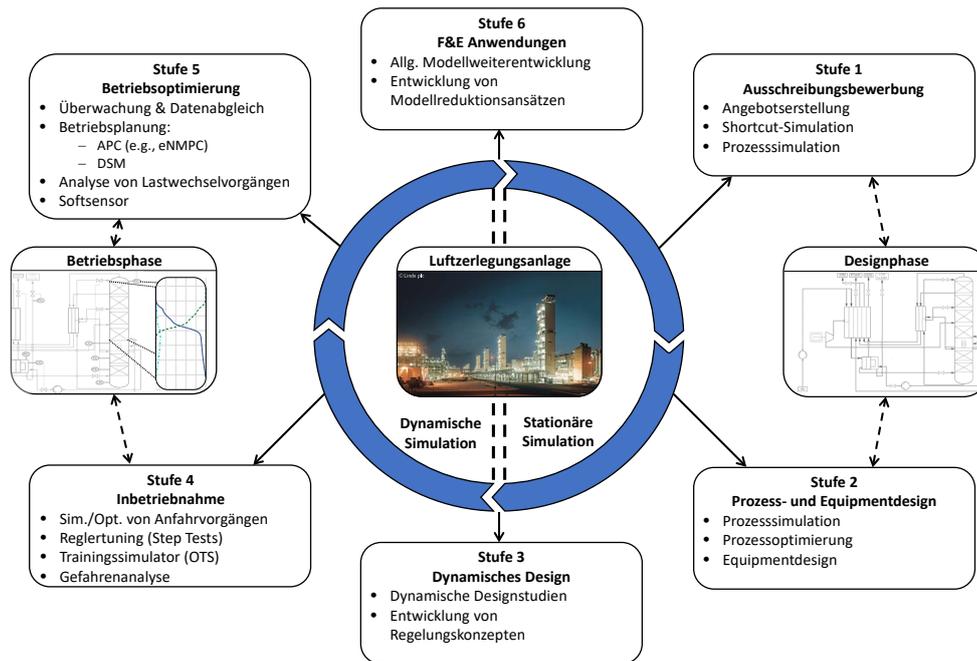


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung eines typischen Lebenszyklus einer ASU nach KENDER ET AL. (2023)

Prozess als auch das Equipment für den gewünschten Betriebspunkt auszulegen und zu optimieren.

Stufe 3 – Dynamisches Design

Ein aufkommender Trend ist der Einsatz von dynamischer Simulation bereits während der Designphase. Dadurch können Aspekte des Anlagenbetriebs bei der Auslegung berücksichtigt werden. Beispielsweise kann so bereits vor dem Bau der Anlage der Einfluss des Equipmentdesigns auf das Flexibilitätspotential ermittelt und dieses durch Änderungen in der Auslegung ggf. verbessert werden. Weiter können hier auch Studien zur Regelbarkeit von neuartigen Anlagentopologien durchgeführt werden. Diese Stufe wird dynamisches Design genannt.

Um die dynamischen Designstudien durchführen zu können, ist jedoch bereits ein Prozess- sowie Equipmentdesign notwendig. Abhängig vom erforderlichen Detailgrad können für das benötigte Design Shortcut- oder detaillierte stationäre Modelle verwendet werden. Konzeptionell soll der DT in der Lage sein, sowohl die stationären als auch die dynamischen Simulationenaufgaben durch die virtuelle ASU abzubilden.

Außerdem ist während der Designphase noch keine reale Anlage vorhanden. Um hier einen bidirektionalen Datentransfer zu gewährleisten, wird das Simulationsmodell des Anlagendesigns als Äquivalent zur Realanlage verwendet. Da die dynamischen Betrachtungen dieses beeinflussen können und andererseits das Design Anforderungen an die Betriebsstudien stellt, wird somit ein Datentransfer in beide Richtungen gewährleistet. Die virtuelle ASU kann nach Bau der Anlage an diese gekoppelt werden, um die nachfolgenden Stufen des Lebenszyklus zu unterstützen.

Stufe 4 – Inbetriebnahme

Die Betriebsphase der Anlage beginnt mit der Stufe Inbetriebnahme. Hier können dynamische Anlagenmodelle dazu genutzt werden, das Anfahren der Anlage durch Simulation zu unterstützen, die Basisregelung der Anlagen mittels in silico Studien vorab einzustellen sowie Anlagenbetreiber durch OTS zu schulen. Der Mehrwert eines DT ist es, durch die Nutzung von dynamischer Simulation die Inbetriebnahmezeit der betrachteten Anlage zu reduzieren. Zusätzlich können mit Hilfe dynamischer Anlagenmodelle Gefahrenanalysen durchgeführt werden, um die Auswirkungen von Equipmentversagen auf die Anlage zu untersuchen. Gefahrenanalysen können abhängig vom Arbeitsablauf bereits früher im Lebenszyklus notwendig sein.

Stufe 5 – Betriebsoptimierung

Sobald die ASU vollständig in Betrieb genommen ist, können dynamische Modelle zur Betriebsoptimierung genutzt werden. Darunter fallen Anwendungen wie beispielsweise die Anlagenüberwachung durch einen stetigen Ist/Soll-Vergleich zwischen Simulations- und Betriebsdaten. Weiter soll der DT dazu genutzt werden, Surrogat-Modelle für das DSM bereitzustellen oder als Regelungsmodell für APC-Methoden zu fungieren. Dadurch kann der Anlagenbetrieb auf unterschiedlichen Zeitskalen optimiert werden. Entsprechend dem in den Abschnitten 3.2 und 3.3 vorgestellten Stand der Technik werden hier auch unterschiedliche Modellgranularitäten benötigt, die alle konzeptionell mittels DT abgebildet werden sollen. Generell wird während der Betriebsphase hauptsächlich die dynamische Simulation der Anlage zur Unterstützung benötigt.

Stufe 6 – F&E Anwendungen

Als letzte Stufe sind die F&E Anwendungen zu nennen. Basierend auf einem stetigen Datenabgleich zwischen Simulations- und Betriebsdaten können hier die Schwachstellen der verwendeten Modelle aufgedeckt und stetig verbessert werden. Darüber hinaus kann ein DT einer Anlage beispielsweise für Entwicklungen von neuen Modellierungs- oder Simulationsansätzen verwendet werden. Diese können inhärent mit den bereits vorhandenen Daten des bestehenden DT verglichen und validiert werden. Dadurch wird eine effiziente und zielgerichtete Entwicklung gewährleistet. Ein Beispiel dafür ist die in KENDER ET AL. (2023) präsentierte Nutzung des DT für die Entwicklung der Dynamic Edmister Method (DEM). Die neuen Methoden stehen für DTs von Neuanlagen zur Verfügung. Diese Stufe ist im Lebenszyklus optional. Darüber hinaus können Weiterentwicklungen sowohl für dynamische als auch stationäre Modelle durchgeführt werden. Daher ist diese Stufe in Abbildung 4.2 zwischen den Grenzen der Simulationsdisziplinen platziert.

Die Idee hinter dem DT-Konzept ist es, den gesamten Lebenszyklus einer ASU mit einem Modell abbilden zu können. Dadurch kann der Aufwand für die Instandhaltung der Modelle deutlich reduziert sowie der Arbeitsablauf optimiert werden. Der DT kann dadurch sowohl für die Design- als auch die Betriebsphase unterstützend genutzt werden. Ermöglicht wird dies dadurch, dass die virtuelle ASU in ihrer Modellgranularität angepasst werden kann. Die virtuelle ASU wird in Abschnitt 4.1.2 genauer beschrieben. Die Modelle der virtuellen ASU sind in der innovativen Simulationsumgebung SMI@LE

implementiert, die in Abschnitt 5.1 im Detail vorgestellt wird. Dadurch kann der DT für verschiedene Anwendungen genutzt werden. Ein für diese Arbeit besonders relevanter Anwendungsfall des DT ist der des *Softsensors* (*Stufe 5 – Betriebsoptimierung*). Diese Anwendung wird im folgenden Abschnitt genauer erläutert.

4.1.1 Anwendung des DT als Softsensor

Im Allgemeinen beinhalten Softsensoren Ansätze und Algorithmen, die auf softwarebasierten oder eingebetteten Computersystemen implementiert sind und zur Schätzung bestimmter physikalischer Größen oder Produktqualitäten in industriellen Prozessen verwendet werden [JIANG ET AL. 2021]. Diese können dazu als mathematische Modelle definiert werden, die zur Vorhersage des Verhaltens realer Systeme dienen [GRAZIANI & XIBILIA 2020].

Softsensoren lassen sich in zwei Hauptkategorien unterteilen: datenbasiert und modellbasiert [LIN ET AL. 2006]. Der DT fällt dabei unter die Kategorie des modellbasierten Softsensors. Für Informationen über datenbasierte Softsensoren wird auf die Publikationen von LIN ET AL. (2006), KADLEC ET AL. (2009) oder JIANG ET AL. (2021) und deren Sekundärliteratur verwiesen. Modellbasierten Softsensoren können u.A. rigorose physikalische Detailmodelle, die Verwendung eines (erweiterten) Kalman-Filters oder die Methode von adaptiven Beobachtern zugrunde liegen [JIANG ET AL. 2021, KADLEC ET AL. 2009]. Da der DT auf einem Simulationsmodell, der virtuellen ASU, basiert, fällt der DT unter die Kategorie der rigorosen physikalischen Detailmodelle. Das Funktionsprinzip ist dabei wie folgt: basierend auf den gemessenen Daten der Realanlage wird parallel der DT genutzt, um diesen Zustand mit Hilfe der virtuellen ASU nachzustellen.

Dabei wird zwischen zwei Datenkategorien, den Vorgabewerten und den ergänzenden Daten, unterschieden. Die Sollwertvorgaben für die Basisregelung der Realanlage werden als Vorgabe für die entsprechenden Regelkreise der Simulation genutzt. Auf Basis dieser Werte wird der virtuelle Anlagenzustand vorgegeben. Zusätzliche, zur Anlagenüberwachung angebrachte Messungen werden als ergänzende Daten verwendet, um einen Ist-Soll-Abgleich zwischen Realanlage und virtueller ASU zu ermöglichen. Der Softsensor ermöglicht es, basierend auf den aktuellen Messdaten, den gesamten Anlagenzustand darzustellen und maximiert den verfügbaren Informationsgehalt während des Anlagenbetriebs. In Abbildung 4.3 wird dies am Beispiel der LPC verdeutlicht.

Auf der rechten Seite ist die konventionelle Instrumentierung einer LPC zu sehen. Durch die Basisregelung vorgegebene Größen sind dabei mit dem Suffix *IC*, was nach DIN EN 62424 für Analoganzeige (Istwertanzeige) (*I*) und Regelung (*C*) steht, versehen [DIN DEUTSCHES INSTITUT FÜR NORMUNG E.V. 2010]. Zusätzliche Messstellen sind lediglich mit dem Suffix *I* gekennzeichnet, da die Regelungskomponente wegfällt. Für den Betrieb der LPC einer ASU werden im in Abbildung 4.3 dargestellten Beispiel neun Größen gemessen oder geregelt. Im Gegensatz dazu ist auf der linken Seite der durch die Verwendung des DT als Softsensor verfügbare Informationsgehalt dargestellt. Neben

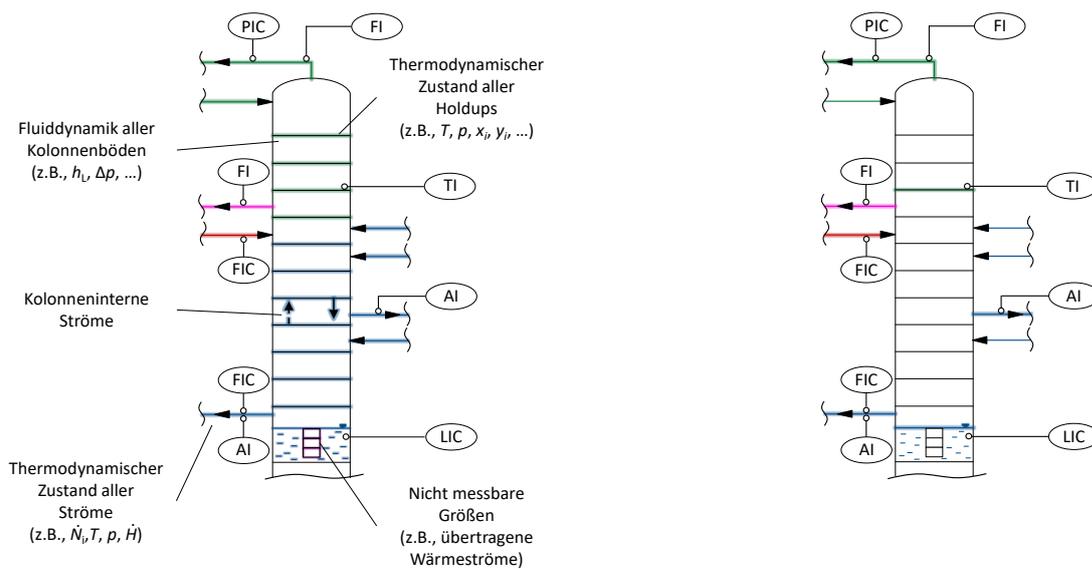


Abbildung 4.3: Verfügbare Informationen der LPC während des Anlagenbetriebs: DT genutzt als Softsensor (links) verglichen mit einer konventionellen Instrumentierung (rechts) nach KENDER ET AL. (2022b)

den thermodynamischen Zuständen aller Holdups sowie den der zu- und abfließenden Ströme sind auch die gesamte Kolonnenfluidodynamik sowie nicht messbare Größen, wie z.B. die übertragenen Wärmeströme am MC, verfügbar.

Diese Vielfalt an Daten kann zur Überwachung, Regelung und Optimierung von industriellen Prozessen genutzt werden [JIANG ET AL. 2021]. Eine Herausforderung für die Nutzung des DT als Softsensor für eine gesamte Anlage ist der erforderliche Rechenaufwand zur Lösung dieser Modelle. Bei dynamischen Simulationen mit einer virtuellen ASU der höchsten Modellgranularität kann die Echtzeitfähigkeit derzeit nicht gewährleistet werden. Jedoch ist eine Softsensor-Anwendung für einzelne Grundoperationen einer ASU wie z.B. der Linde Doppelkolonne mittels DT denkbar. Da davon auszugehen ist, dass zukünftig die verfügbaren Rechenleistungen weiter steigen, wird die Nutzung von gesamten Anlagenmodellen als Softsensor mittels DT zunehmend attraktiver. Ein Beispiel für den Mehrwert der Nutzung des DT als Softsensor ist das in Abschnitt 6.2 entwickelte Betriebskonzept zur Erhöhung der Lastwechselgeschwindigkeiten für industriell genutzte ASUs, welches auf nicht messbaren Größen basiert.

Darüber hinaus soll der DT für eine Vielzahl an weiteren Anwendungen genutzt werden. Dafür muss die virtuelle ASU für unterschiedliche Simulationsaufgaben verwendet werden können. Der Aufbau und die Eigenschaften der virtuellen ASU sind im folgenden Abschnitt genauer erläutert.

4.1.2 Adaptives Anlagenmodell – die virtuelle ASU

Nachfolgend wird der Kernbestandteil des DT, die virtuelle ASU (siehe Abbildung 4.1), präsentiert. Dabei handelt es sich um ein (dynamisches) druckgetriebenes Anlagenmodell, welches durch die Variation der Modellgranularität entsprechend der Aufgabenstellung angepasst werden kann.

Bei der Modellentwicklung wird ausgehend von der höchsten Modellgranularität ein top-down-Ansatz verfolgt. Im Rahmen dieser Arbeit liegt der Fokus hauptsächlich auf der Entwicklung eines druckgetriebenen dynamischen Anlagenmodells mit höchster Modellgranularität. Zusätzlich werden Abstufungen der virtuellen ASU in der Komplexität vorgestellt (Reduktion der Modellgranularität).

Im Detail bedeutet dies, dass bei der Reduktion der Modellgranularität anstelle von Designkorrelationen für z.B. den Kolonnendruckverlust oder Wärmeübergangskoeffizienten konstante Werte verwendet werden können. Eine weitere Möglichkeit für die Reduktion der Modellgranularität ist die Verwendung von Modellreduktionsansätzen analog zu KENDER ET AL. (2023). Darüber hinaus können auch nichtlineare *pressure-flow*-Zusammenhänge, beispielsweise hervorgerufen durch Ventile, durch lineare Beziehungen ersetzt werden.

Ermöglicht wird dies durch einen modular-hierarchischen Modellierungsansatz, bei dem einzelne Teilmodelle der Grundoperationen nahtlos ersetzt werden können. Neben der simulativen Abbildung des Anlagenbetriebs durch dynamische Simulation soll die virtuelle ASU auch in der Lage sein, für stationäre Simulationaufgaben verwendet zu werden, um den gesamten Lebenszyklus einer ASU abbilden zu können. Diese Modellgranularität wurde jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht betrachtet.

Generell gilt bei der Adaption der Modellgranularität die Fragestellung, welche Auflösung der Anlage notwendig ist, um die entsprechende Aufgabe unter dem Aspekt des minimalen Rechenaufwands hinreichend genau erfüllen zu können.

Essentiell dabei ist die Minimierung der benötigten CPU-Zeit hauptsächlich im Bezug auf eine online Anwendung des DT. Hier sind Simulationsmodelle notwendig, die (optimierte) Vorhersagen in Echtzeit bereitstellen müssen. Wie bereits in Abschnitt 4.1.1 erwähnt, ist dies für die höchste Modellgranularität der virtuellen ASU aktuell nicht möglich. Daher gilt es, für diese Anwendungen auf reduzierte Modelle zurückzugreifen. Mit steigender Rechenleistung sowie stetigen Verbesserungen der Lösungsalgorithmen geraten auch dynamische Detailmodelle für online Anwendungen immer mehr in den Fokus. Im Rahmen dieser Arbeit ist die Anwendung des DT jedoch auf offline Studien limitiert.

Neben einem modular-hierarchischen Ansatz für die Entwicklung der Grundoperationen ist der Aufbau der virtuellen ASU, dargestellt in Abbildung 4.4, ebenfalls von hierarchischer Natur.

In der obersten Ebene ist dabei die virtuelle ASU, das druckgetriebene dynamische Anlagenmodell, zu finden. Dieses besteht aus einer Kombination von für die betrachtete

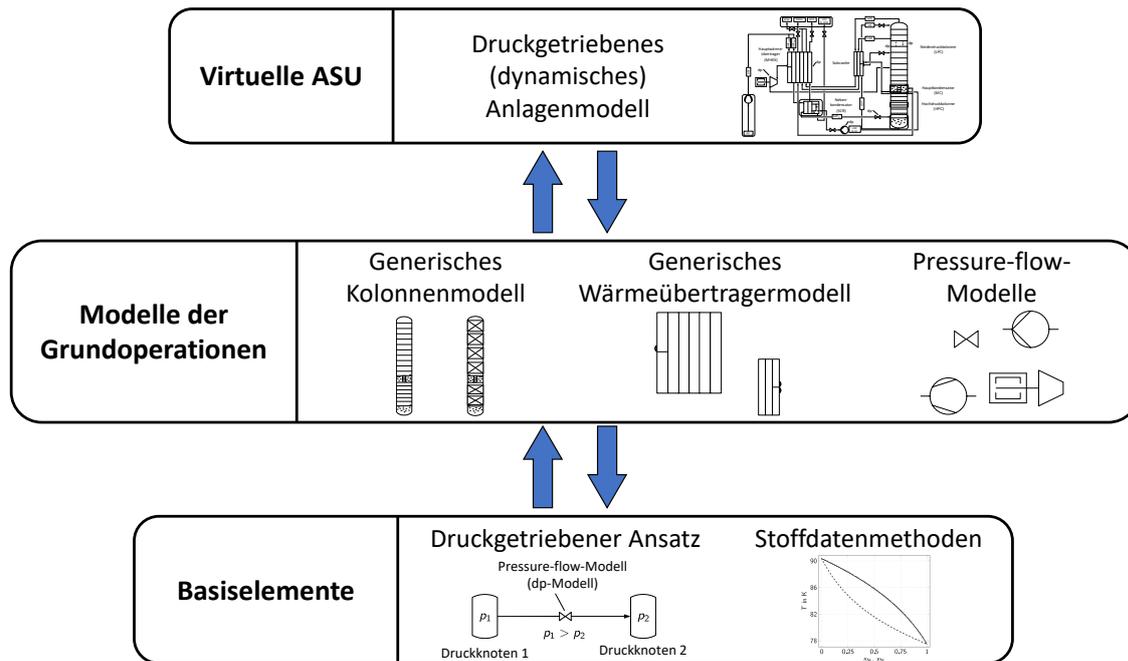


Abbildung 4.4: Schematischer Aufbau der virtuellen ASU nach KENDER ET AL. (2021a)

ASU-Topologie notwendigen Modellen der verfahrenstechnischen Grundoperationen. Für eine ASU werden Kolonnen-, Wärmeübertrager, die entsprechenden Maschinen sowie Ventil- und Rohrleitungsmodelle benötigt. Deren zugrunde liegende Annahmen werden in Abschnitt 4.3 beschrieben. Auf die modelltechnische Umsetzung sowie die Regularisierung dieser Modelle wird in Kapitel 5 eingegangen.

Die unterste Ebene der Basiselemente enthält grundlegende Methoden, die in allen Grundoperationen verfügbar sind. Hier finden sich die Methoden für die Berechnung der Stoffwerte sowie der druckgetriebene Simulationsansatz wieder. Für die Stoffdatenberechnung wird die proprietäre Software *General Multiphase Property System*[®] (GMPS[®]) der Firma Linde verwendet. In dieser Arbeit wird analog zu WUNDERLICH (2018) für alle Studien Luft als Dreistoffgemisch der Hauptkomponenten N_2 , Ar und O_2 betrachtet und mittels kubischer Zustandsgleichung nach Soave–Redlich–Kwong beschrieben [SOAVE 1972]. Parameteranpassungen sowie weitere Berechnungsmethoden für bestimmte Stoffwerte sind ebenfalls an WUNDERLICH (2018) angelehnt.

Weiter basieren die verwendeten Modelle auf dem druckgetriebenen Ansatz nach THOMAS ET AL. (2020), welcher neben den Stoffdatenmethoden auch allen Modellen in der Ebene darüber zur Verfügung steht. Die vorgestellte Abbildung dient als Gliederung für die zwei nachfolgenden Abschnitte. Dabei wird zunächst auf die Grundlagen des gewählten Simulationsansatzes eingegangen, bevor die grundlegenden Zusammenhänge des druckgetriebenen Ansatzes (siehe Abbildung 4.4 Basiselemente) vorgestellt werden. Darauf folgend werden die Modelle der Grundoperationen im Detail präsentiert.

4.2 Dynamische Simulation von verfahrenstechnischen Prozessen

Der nachfolgende Abschnitt befasst sich mit den grundlegenden Aspekten des gewählten Simulationsansatzes. Zunächst wird auf die verwendete Simulationssoftware sowie das Lösungsverfahren, welches für die dynamische Simulation der ASU-Modelle verwendet wird, eingegangen. Danach wird der druckgetriebene Ansatz nach THOMAS ET AL. (2020) vorgestellt und dessen Anwendung am Beispiel einer ASU verdeutlicht.

4.2.1 Grundlagen des verwendeten Simulationsansatzes

Für die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Simulationsstudien wird der Prozesssimulator OPTISIM[®] verwendet. Bei OPTISIM[®] handelt es sich um ein proprietäres Programm, welches von der Firma Linde entwickelt worden ist und dort seit mehreren Jahrzehnten für die Auslegung, Optimierung sowie dynamische Simulation von verfahrenstechnischen Prozessen genutzt wird [BURR 1993, EICH-SOELLNER ET AL. 1997].

OPTISIM[®] ist ein gleichungsbasierter Prozesssimulator. Für die Lösung des Gleichungssystems kommt ein von der Firma Linde weiterentwickeltes Newton-Verfahren zum Einsatz. Eine detaillierte Beschreibung dazu ist in HANKE-BOURGEOIS (2009) zu finden. Weitere Informationen zu diesem numerischen Lösungsverfahren sind u.a. KRONSEDER (2003) oder ENGL ET AL. (1999) zu entnehmen.

Bei der Simulation von verfahrenstechnischen Prozessen entstehen i.d.R. dünnbesetzte Gleichungssysteme, die durch eine problemspezifische Anpassung der Lösungsstrategie effizient und robust gelöst werden können. Ausschlaggebend für das verwendete Newton-Verfahren ist die Bildung der Jacobi-Matrix $J(x_n)$ der Variablen x im Iterationsschritt n . Diese wird für eine Nullstellensuche im mehrdimensionalen Fall benötigt. Für eine Iteration n ergibt sich durch Gleichung (4.1) der Wert für den nächsten Iterationsschritt $n + 1$ [HANKE-BOURGEOIS 2009] gemäß

$$x_{n+1} = x_n - (J(x_n))^{-1} \cdot f(x_n). \quad (4.1)$$

Die Jacobi-Matrix $J(x)$ beinhaltet alle partiellen Ableitungen aller Funktionen nach allen Variablen und ist durch Gleichung (4.2) definiert.

$$J(x) = \frac{\partial f_i}{\partial x_j} = \begin{pmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial x_1} & \frac{\partial f_1}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial f_1}{\partial x_n} \\ \frac{\partial f_2}{\partial x_1} & \frac{\partial f_2}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial f_2}{\partial x_n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial f_n}{\partial x_1} & \frac{\partial f_n}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial f_n}{\partial x_n} \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

Für die zeitliche Integration des Gleichungssystems wird ein Rückwärtsdifferenzenverfahren, engl.: *backward differentiation formula* (BDF)-Verfahren verwendet [DEUFLHARD & HOHMANN 2008]. Durch Verwendung eines Prädiktor-Korrektor-Verfahrens wird für den Zeitschritt $t + 1$ zunächst eine Näherungslösung des Gleichungssystems erzeugt. Dafür wird ein Polynom verwendet, dessen Koeffizienten je nach Ordnung aus dem aktuellen Zeitschritt t sowie den vorherigen Zeitschritten $t - 1$, $t - 2$, ... ermittelt wird. Mit den extrapolierten Startwerten aus der Polynomfunktion wird in einem zweiten Schritt die exakte Lösung über eine Korrektur gefunden, welche durch das oben genannte Newton-Verfahren realisiert wird. Darüber hinaus ist eine variable Schrittweitensteuerung implementiert, um eine Anpassung des aktuellen Zeitschritts entsprechend der vorliegenden Gradienten des Gleichungssystems zu ermöglichen. Für eine detaillierte Erklärung des BDF-Verfahrens ist auf die Arbeit von KRONSEDER (2003) zu verweisen.

Die dynamische Simulation von verfahrenstechnischen Prozessen resultiert typischerweise in einem DAE-System. Als Beispiel für Differentialgleichungen sind die notwendigen Bilanzgleichungen für den Energie- und den Masseninhalte für Volumenelemente mit Fluid-Holdup zu nennen. Darüber hinaus verfügen dynamische Modelle verfahrenstechnischer Systeme auch über algebraische Zusammenhänge wie z.B. Wärmeübergangs- oder Druckverlustbeziehungen. Ein DAE-System kann entsprechend den Gleichungen (4.3) und (4.4)

$$\dot{x}_d(t) = f(x_d(t), x_a(t), r, k, t) \quad (4.3)$$

$$0 = g(x_d(t), x_a(t), r, k, t), \quad (4.4)$$

dargestellt werden. Hierbei ist x_d stellvertretend für alle differentiellen Zustandsgrößen und \dot{x}_d für deren Zeitableitung. x_a repräsentiert die algebraischen Größen. Die Eingangsparameter des Modells werden mit r und die Konstanten mit k beschrieben. t repräsentiert die Zeit.

4.2.2 Prozesssimulation mit druckgetriebener Strömung

Neben den numerischen Grundlagen werden im Folgenden die elementaren Zusammenhänge des druckgetriebenen Simulationsansatzes nach THOMAS ET AL. (2020) und dessen Anwendung auf eine ASU vorgestellt. Bezogen auf Abbildung 4.4 ist dieser Ansatz der Ebene der Basiselemente zuzuordnen und somit grundlegend für alle Modelle, die für die virtuelle ASU verwendet werden. Der nachfolgende Abschnitt enthält Teile aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2021a), welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

Im Gegensatz zur konventionellen strömungsgetriebenen Prozesssimulation resultiert hier ein Stoffmengenstrom aus dem anliegenden Druckunterschied sowie dem entsprechenden Widerstandsbeiwert des betrachteten Strömungswegs. Die Grundgleichung des verwendeten Ansatzes ist die quasi-lineare pressure-flow-Beziehung nach Gleichung (4.5):

$$C \cdot \Delta p = R \cdot \dot{N}. \quad (4.5)$$

Dabei sind C und R Widerstandsbeiwerte für die Strömung, welche beliebige (lineare oder nichtlineare) funktionale Zusammenhänge repräsentieren können. Δp ist definiert als der Druckunterschied zwischen zwei angrenzenden *Druckknoten* und \dot{N} entspricht dem resultierenden Stoffmengenstrom.

Für eine detaillierte Erklärung des Ansatzes wird das in Abbildung 4.5 dargestellte Minimalbeispiel verwendet.

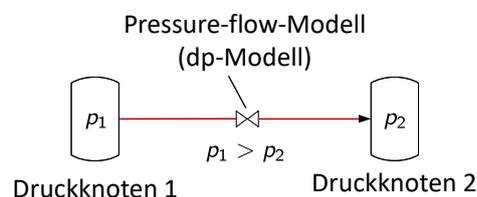


Abbildung 4.5: Minimalbeispiel für die Anwendung des druckgetriebenen Ansatzes nach THOMAS ET AL. (2020) analog zu KENDER ET AL. (2021a)

Bei einem Druckknoten handelt es sich um ein finites Volumen mit Fluid-Holdup. Dabei gelten für die entsprechenden Volumina isochore Bedingungen. Das erlaubt eine implizite Bestimmung des Drucks via Gleichung (4.6):

$$V_{td} = V_{geo}. \quad (4.6)$$

Unter Variation des Drucks wird das thermodynamische Volumen V_{td} des Fluids an das durch die Geometrie maximal mögliche Volumen V_{geo} angepasst. Zwei angrenzende Druckknoten sind dabei mindestens durch ein pressure-flow-Modell (dp-Modell) verbunden. Dieses beinhaltet selbst keinen Fluid-Holdup und etabliert die pressure-flow-Beziehung zwischen zwei Druckknoten nach Gleichung (4.5).

Die Strömungsrichtung ist dabei abhängig vom Vorzeichen des Druckunterschieds nach Gleichung (4.7):

$$\Delta p = p_1 - p_2. \quad (4.7)$$

Die Indizes repräsentieren dabei die jeweiligen Druckknoten in Abbildung 4.5. Im dargestellten Beispiel verläuft die Strömungsrichtung von Druckknoten 1 zu 2, da die Drücke entsprechend $p_1 > p_2$ vorgegeben sind. Diese Richtung ist als Vorwärtsströmung definiert. Zusätzlich können mit Hilfe dieses Ansatzes Rückwärts- ($p_1 < p_2$) sowie Nullströmungen ($p_1 = p_2$) abgebildet werden.

Für das verwendete Lösungsverfahren sind stetige Übergänge zwischen den Strömungsrichtungen essentiell für die Stabilität und die benötigte Berechnungszeit der Simulation. Daher werden diese durch die Verwendung von Sigmoidfunktionen reguliert. Eine Regularisierungsfunktion $f_\varepsilon(x)$ wird verwendet, um zwei stückweise definierte Funktionen $f(x)_{x < x'}$ und $f(x)_{x \geq x'}$ stetig ineinander übergehen zu lassen. Die Regularisierungsfunktion $f_\varepsilon(x)$ ist in Gleichung (4.8) wie folgt definiert:

$$f_\varepsilon(x) = (1 - \lambda_\varepsilon) \cdot f(x)_{x < x'} + \lambda_\varepsilon \cdot f(x)_{x \geq x'}. \quad (4.8)$$

λ_ε ist dabei ein sog. Homotopieparameter [WAYBURN & SEADER 1987] und entsprechend Gleichung (4.9)

$$\lambda_\varepsilon = \begin{cases} 0 & \text{für } x \leq x' - \varepsilon \\ 0.5 + 0.5 \cdot \sin\left(\frac{\pi}{2} \cdot \frac{x}{\varepsilon}\right) & \text{für } x' - \varepsilon < x < x' + \varepsilon \\ 1 & \text{für } x \geq x' + \varepsilon \end{cases} \quad (4.9)$$

für die jeweiligen Bereiche definiert. Für weitere Informationen bezüglich Regularisierungen ist auf die Publikation von THOMAS ET AL. (2020), die Dissertation von WUNDERLICH (2018) sowie deren Sekundärliteratur zu verweisen.

Dieser Ansatz erlaubt die Interpretation der virtuellen ASU als Drucknetzwerk. Am Beispiel einer ASU-Topologie ohne Produktion von Ar, abgebildet in Abbildung 4.6, wird dies detailliert erläutert.

Die Randbedingungen des Drucknetzwerks sind durch die ein- und austretenden Prozessströme definiert. Diese haben ihren Ursprung oder fließen in sog. *Battery Limits*. Die Menge an Fluid, die durch das Drucknetzwerk strömt, ergibt sich aus den vorgegebenen Randwerten für den Druck und den Strömungswiderständen innerhalb des Netzwerks.

Die Battery Limits können entweder als Quellen (---) oder als Senken (...) für Prozessströme fungieren. In Abbildung 4.6 ist zu erkennen, dass der Hauptluftverdichter vereinfacht als Prozessstromquelle modelliert ist. Dies erlaubt die Vorgabe des Druckniveaus. Eine Quelle definiert die Zusammensetzung und den thermodynamischen Zustand des eintretenden Prozessstroms in das Drucknetzwerk. Die Produktströme fließen in Senken, welche das gewünschte Druckniveau der Produkte besitzen. Hier werden die

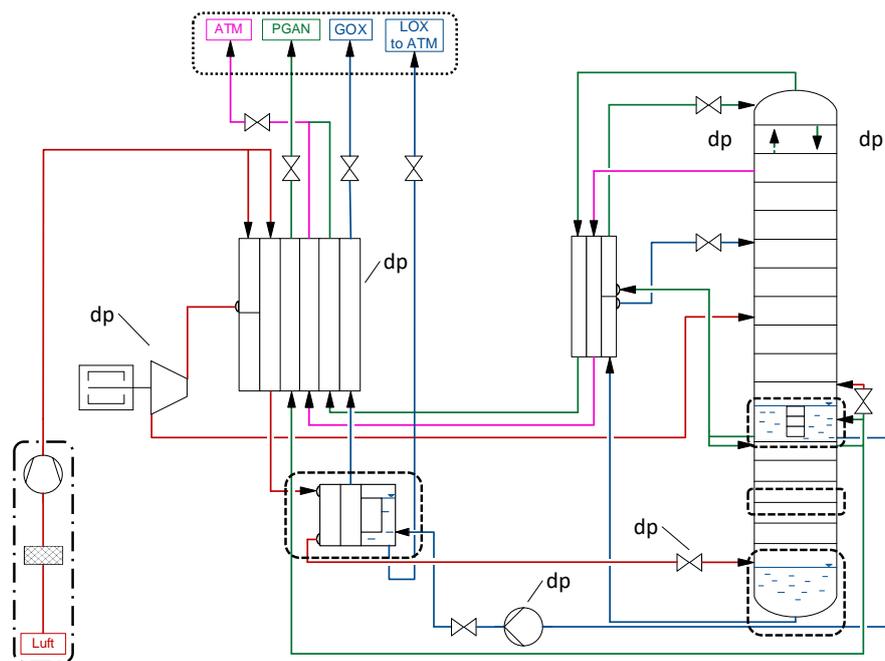


Abbildung 4.6: Interpretation einer beispielhaften ASU als Drucknetzwerk nach KENDER ET AL. (2021a)

Zusammensetzung und der thermodynamische Zustand durch die eintretenden Ströme definiert. Bei einer Strömungsumkehr eines anliegenden Stroms fungieren Quellen als Senken und vice versa.

Innerhalb des Drucknetzwerks befinden sich die Druckknoten. In Abbildung 4.6 sind Beispiele dafür Kolonnenböden, der Sumpf der HPC oder beide Verdampfer/Kondensatoren (- - -). Die pressure-flow-Modelle (in Abbildung 4.6 gekennzeichnet mit dp) repräsentieren alle Operationen, die das Druckniveau eines Prozessstroms verändern. Diese basieren auf der generischen pressure-flow-Beziehung aus Gleichung (4.5). Die Nichtlinearitäten der pressure-flow-Beziehungen dieser Grundoperationen werden durch die Widerstandsbeiwerte C oder R ausgedrückt, da diese über beliebige funktionale Zusammenhänge berechnet werden können. Durch die Interpretation einer ASU als Drucknetzwerk kann das fluiddynamische Verhalten der Anlage physikalisch korrekt vorhergesagt werden.

4.3 Relevante verfahrenstechnische Grundoperationen

Für die dynamische Simulation von ASUs ist die Modellierung unterschiedlicher verfahrenstechnischer Grundoperationen notwendig. Bezogen auf Abbildung 4.4 finden sich diese auf der Ebene der Grundoperationen wieder. Sämtliche Modelle enthalten die Methoden der Basiselemente. In den nachfolgenden Abschnitten werden die zugrunde liegenden Zusammenhänge der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modelle beschrieben.

4.3.1 Pressure-Flow-Modelle

In einer ASU werden für die Förderung und den Transport von Fluiden unterschiedliche Maschinen, Rohrleitungen und Ventile eingesetzt. Die entsprechenden pressure-flow-Zusammenhänge müssen in der virtuellen ASU entsprechend berücksichtigt werden. Beim Fluidtransport durch Maschinen kommt mit benötigter oder frei werdender mechanischer Leistung noch ein weiterer Einflussfaktor im pressure-flow-Zusammenhang hinzu.

Da die ablaufenden Prozesse zur Druckveränderung von Fluiden relativ zum gesamten Anlagenverhalten auf kleinen Zeitskalen ablaufen, wird die Modellierung der Maschinen auf quasistationäre Betrachtungen beschränkt. Im Folgenden werden die grundlegenden Zusammenhänge für die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modelle von Ventilen, Expandern, Pumpen und Verdichter vorgestellt. Auf die Modellierung von Rohrleitungen wird nicht eingegangen.

Für die Anwendung der Modelle in Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz müssen die nachfolgenden grundlegenden Zusammenhänge zur Druckveränderung durch Gleichung (4.5) dargestellt werden können. Dies wird in Abschnitt 5.2 im Detail beschrieben.

Ventile

Bei Ventilen handelt es sich um Apparaturen, die in Anlagen verbaut werden, um den Durchfluss von Fluiden zwischen Behältern zu steuern oder regeln. Beim Durchströmen des Ventils wird das entsprechende Gas oder die Flüssigkeit adiabatisch entspannt, was einer isenthalpen Zustandsänderung entspricht. Die nachfolgenden Zusammenhänge basieren auf der DIN EN 62424 [DIN DEUTSCHES INSTITUT FÜR NORMUNG E.V. 2015].

Eine charakteristische Größe zur Beschreibung von Ventilen ist der *Durchflussfaktor* K_V , welcher einen Zusammenhang zwischen effektiver Ventilgröße (Ventilöffnungsgrad) und Durchfluss herstellt. Dieser ist für inkompressible Medien nach Gleichung (4.10) folgendermaßen definiert:

$$K_V = \dot{V} \cdot \sqrt{\frac{\rho}{\rho_0} \cdot \frac{\Delta p_0}{\Delta p}}. \quad (4.10)$$

Der K_V -Wert entspricht dabei dem Produkt des Volumenstroms \dot{V} mit der Wurzel des Verhältnisses der Dichte ϱ zu einer Druckerniedrigung Δp , bezogen auf einen Druckabfall $\Delta p_0 = 1$ bar von Wasser bei einer Temperatur von $5 - 30^\circ\text{C}$ mit entsprechender Dichte $\varrho_0 = 1000 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$. Somit ergibt sich folgende Zahlenwertgleichung (4.11):

$$K_V = \dot{V} \cdot \sqrt{\frac{\varrho}{\Delta p \cdot 1000}} \quad \text{mit} \quad K_V \text{ in } \frac{\text{m}^3}{\text{h}} \quad (4.11)$$

$$\dot{V} \text{ in } \frac{\text{m}^3}{\text{h}}$$

$$\varrho \text{ in } \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$$

$$\Delta p \text{ in bar.}$$

Bei gasförmigen Medien muss deren Kompressibilität berücksichtigt werden. Dabei wird zwischen unter- und überkritischem Strömungszustand unterschieden. Bei Erstgenanntem ist der Durchsatz abhängig von den Druckniveaus p_1 vor und p_2 nach dem Ventil. Somit gilt für $p_2 > \frac{p_1}{2}$ und $\Delta p < \frac{p_1}{2}$ folgende Zahlenwertgleichung (4.12):

$$K_V = \frac{\dot{V}_N}{514} \cdot \sqrt{\frac{\varrho_N \cdot T_1}{\Delta p \cdot p_2}} \quad \text{mit} \quad K_V \text{ in } \frac{\text{m}^3}{\text{h}} \quad (4.12)$$

$$\dot{V}_N \text{ in } \frac{\text{m}_N^3}{\text{h}}$$

$$\varrho_N \text{ in } \frac{\text{kg}}{\text{m}_N^3}$$

$$\Delta p \text{ in bar}$$

$$p_2 \text{ in bar}$$

$$T_1 \text{ in K.}$$

Bei \dot{V}_N handelt es sich um den Volumenstrom und bei ϱ_N um die Dichte des Gases bei Normbedingungen ($p_N = 1.013$ bar und $T_N = 0^\circ\text{C}$). T_1 entspricht der Temperatur des Gases vor Eintritt in das Ventil.

Für einen überkritischen Strömungszustand mit $p_2 < \frac{p_1}{2}$ und $\Delta p > \frac{p_1}{2}$ ist der Durchsatz durch das Ventil nur vom Eintrittsdruck p_1 abhängig. Es gilt die Zahlenwertgleichung (4.13):

$$K_V = \frac{\dot{V}_N}{257 \cdot p_1} \cdot \sqrt{\varrho_N \cdot T_1} \quad \text{mit} \quad K_V \text{ in } \frac{\text{m}^3}{\text{h}} \quad (4.13)$$

$$\dot{V}_N \text{ in } \frac{\text{m}_N^3}{\text{h}}$$

$$\varrho_N \text{ in } \frac{\text{kg}}{\text{m}_N^3}$$

$$p_1 \text{ in bar}$$

$$T_1 \text{ in K.}$$

Vereinfachend wird im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich Gleichung (4.11) verwendet, um einen Zusammenhang zwischen Druckverlust Δp , Durchsatz \dot{V} und Durchflussfaktor K_V herzustellen, da die für das dynamische Verhalten einer ASU relevanten Ventile mit kryogenen Flüssigkeiten durchströmt werden.

Bei Ventilen, die für Regelungszwecke verwendet werden, lässt sich der K_V -Wert mit Hilfe des relativen Ventilhubes h_V einstellen. Bei diesem funktionalen Zusammenhang handelt es sich um die *Ventilkennlinie*. Dabei wird zwischen *linearer Ventilkennlinie* in Gleichung (4.14)

$$K_V = K_{VS} \cdot h_V \quad (4.14)$$

und *gleichprozentiger Ventilkennlinie* in Gleichung (4.15)

$$K_V = K_{VS} \cdot e^{(h_V-1) \cdot n} \quad (4.15)$$

unterschieden. Der Exponent n entspricht dabei der Neigung der gleichprozentigen Kennlinie. Der relative Ventilhub h_V ist in Gleichung (4.16) folgendermaßen definiert:

$$h_V = \frac{H_V}{H_{VS}}. \quad (4.16)$$

Dabei entspricht H_V dem aktuellen Hub und H_{VS} dem Nennhub, welcher erreicht wird, wenn das Ventil komplett (zu 100%) geöffnet ist. In diesem Fall entspricht der K_V -dem K_{VS} -Wert, also dem maximalen Durchflussfaktor, welcher repräsentativ für die Ventilgröße ist.

Expander

Bei Expandern handelt es sich um Apparate, die unter Abgabe von mechanischer Arbeit eine Entspannung des durchströmenden Fluids hervorrufen. Diese haben das gleiche Wirkprinzip wie Turbinen mit dem Unterschied, dass hier meist nicht die Maximierung der mechanischen Arbeit das Ziel der Auslegung ist, sondern das effiziente Abkühlen auf möglichst tiefe Temperaturen. Darüber hinaus werden Turbinen meist für die Entspannung von Gasen verwendet. Bei kryogenen Prozessen wie der Luftzerlegung können zum Erreichen tiefkalter Temperaturen (partiell) verflüssigte Fluide mittels Expander entspannt werden. Die nachfolgenden Zusammenhänge sind STEPHAN ET AL. (2013) entnommen.

Bei einem idealen, verlustfrei arbeitenden Expander erfolgt die Druckminderung bei konstanter Entropie. Es handelt sich um eine isentrope Zustandsänderung. Dabei kommt es je nach Fluidzustand zu einer Erniedrigung der Temperatur. Der Betrag der idealisierten, abgegebenen mechanischen Leistung $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$ kann abgeleitet aus einer stationären Energiebilanz mittels Gleichung (4.17) berechnet werden:

$$P_{\text{mech}}^{\text{id}} = \dot{M} \cdot (h_{\text{out}}^s - h_{\text{in}}). \quad (4.17)$$

Das Vorzeichen von $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$ ist negativ, da Leistung freigesetzt wird. Dabei entspricht \dot{M} dem Massenstrom des Fluids. h_{in} ist definiert als die spezifische Enthalpie am Eintritt und $h_{\text{out}}^{\text{s}}$ am Austritt des Expanders bei einer isentropen Entspannung mit $s_{\text{out}} = s_{\text{in}}$. Durch diesen Zusammenhang wird die maximale mechanische Leistung, also der maximale Nutzen des Expanders, bestimmt.

In der Praxis kommt es jedoch zu Irreversibilitäten. Dadurch wird im Expander eine geringere mechanische Leistung frei, die genutzt werden kann. Für den realen Entspannungsvorgang gilt $s_{\text{out}} > s_{\text{in}}$. Die dadurch entstehenden Verluste lassen sich nach Gleichung (4.18) durch Verwendung eines isentropen Wirkungsgrads η_{isen} beschreiben:

$$\eta_{\text{isen}} = \frac{P_{\text{mech}}}{P_{\text{mech}}^{\text{id}}} = \frac{h_{\text{out}} - h_{\text{in}}}{h_{\text{out}}^{\text{s}} - h_{\text{in}}} \quad (4.18)$$

Mit diesem Zusammenhang kann durch Gleichung (4.19) die tatsächlich frei werdende Leistung berechnet werden:

$$P_{\text{mech}} = \eta_{\text{isen}} \cdot \dot{M} \cdot (h_{\text{out}}^{\text{s}} - h_{\text{in}}). \quad (4.19)$$

Pumpen

Im Allgemeinen dienen Pumpen dazu, eine Erhöhung des Drucks von Flüssigkeiten zu bewirken. Dazu wird dem Fluid zusätzliche Energie in Form von mechanischer Leistung P_{mech} zugeführt. Die im Folgenden vorgestellten Zusammenhänge basieren auf STEPHAN ET AL. (2013).

Aus einer stationären Energiebilanz um die Pumpe gilt für inkompressible Fluide folgender idealisierter Zusammenhang (siehe Gleichung (4.20)) für die benötigte mechanische Leistung $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$, um für einen Volumenstrom \dot{V} eine Druckerhöhung von $\Delta p = (p_{\text{out}} - p_{\text{in}})$ zu realisieren:

$$P_{\text{mech}}^{\text{id}} = \dot{V} \cdot \Delta p. \quad (4.20)$$

Diese Beziehung beschreibt eine verlustfrei arbeitende Pumpe. $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$ entspricht der minimalen mechanischen Leistung, die der Pumpe zugeführt werden muss. Im Idealfall liegt eine isotherme Zustandsänderung vor.

In der Realität kommt es jedoch analog zum Expander zu Irreversibilitäten und dadurch zu einem höheren benötigten Leistungseintrag. Die unter Berücksichtigung von Verlusten (η_{pump}) benötigte Leistung kann durch Gleichung (4.21) ausgedrückt werden:

$$P_{\text{mech}} = \frac{\dot{V} \cdot \Delta p}{\eta_{\text{pump}}}. \quad (4.21)$$

Verdichter

Analog zu Pumpen handelt es sich bei Verdichtern um Maschinen, die den Druck des durchströmten Fluids erhöhen. Dabei werden Verdichter verwendet, um Gase auf ein gewünschtes Druckniveau anzuheben. Auch hier basieren die nachfolgend vorgestellten grundlegenden Zusammenhänge auf STEPHAN ET AL. (2013).

Bei einem idealen, verlustfrei arbeitenden Verdichter liegt eine isentrope Zustandsänderung vor. Die idealisierte benötigte mechanische Leistung $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$ kann analog zum Expander basierend auf einer stationären Energiebilanz mittels Gleichung (4.17) berechnet werden. Da hier zusätzliche Leistung benötigt wird, ist das Vorzeichen von $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$ beim Verdichter positiv, wohingegen die frei werdende Leistung des Expanders ein negatives Vorzeichen von $P_{\text{mech}}^{\text{id}}$ nach sich zieht. Es handelt sich hierbei um die minimale mechanische Leistung, dem minimalen Aufwand, der dem Verdichter für die gewünschte Druckerhöhung des Gases zugeführt werden muss.

Wie bei den bereits vorgestellten Maschinen kommt es auch hier in der praktischen Anwendung zu Irreversibilitäten, die analog zum Expander mittels eines isentropen Wirkungsgrads η_{isen} (siehe Gleichung (4.18)) zusammengefasst werden können. Für die reale Leistung, die für den Verdichtungsprozess des Gases aufgewendet werden muss, ergibt sich analog zum Expander der Zusammenhang nach Gleichung (4.19).

Bei den vorgestellten Apparaten zur Veränderung des Druckniveaus eines Fluids wird ein charakteristischer Zusammenhang zwischen Druckunterschied und Durchfluss hergestellt. Dieser kann entweder explizit (Ventil) oder implizit über einen Leistungseintrag und die anliegenden Randbedingungen (Expander, Pumpe, Turbine) vorgegeben werden.

4.3.2 Rektifikationskolonnen

Der wichtigste Bestandteil der virtuellen ASU ist das entwickelte Modell der Rektifikationskolonne. Die Genauigkeit der Vorhersage der Gleichgewichte innerhalb der Kolonnen einer ASU wirkt sich direkt auf die geforderten Produktreinheiten aus, die sowohl während des konventionellen als auch des lastflexiblen Betriebs stets eingehalten werden müssen. Daher muss deren Beschreibung so akkurat wie möglich sein.

Im Rahmen dieser Arbeit wird das generische Kolonnenmodell, welches auf der Dissertation von WUNDERLICH (2018) basiert, weiterentwickelt. Dabei handelt es sich um ein rigoroses Stufe-zu-Stufe Modell, welches anhand theoretischer Trennstufen diskretisiert wird. Dieser Ansatz entspricht dem Stand der Technik und ist in der Literatur auch als *Equilibrium-Modell* (*EQ-Modell*) bekannt [STICHLMAIR ET AL. 2021].

Diese Herangehensweise kann sowohl für die Beschreibung von Boden- als auch von Kolonnen mit strukturierten Packungen herangezogen werden. Bei Bodenkolonnen wird dabei oftmals über die Verwendung eines Wirkungsgrads ein Zusammenhang zwischen theoretischer und praktischer Anzahl an Trennstufen verwendet. Für strukturierte Packungen wird dazu das Höhenäquivalent einer theoretischen Trennstufe, engl.: *height equivalent to one theoretical plate* (HETP), herangezogen. Dieser Wert beschreibt die

tatsächliche Höhe der Packung, welche genau einer theoretischen Trennstufe entspricht. [WUNDERLICH 2018, STICHLMAIR ET AL. 2021]

Das Kernstück des Kolonnenmodells ist die theoretische Trennstufe, welche, entsprechend der für die Trennaufgabe benötigten Anzahl, in der Kolonne vorhanden ist. Die grundlegenden Beziehungen zur Beschreibung des Modells der theoretischen Trennstufe sind Massen- und Energiebilanzen, die Darstellung der angenommenen Gleichgewichte sowie Korrelationen zur Berechnung des Druckverlusts sowie des flüssigen Holdups. Im Rahmen dieser Arbeit wird das generische Kolonnenmodell durch die Darstellung von Siebbodenkolonnen erweitert. Daher werden im Folgenden die fundamentalen Gleichungen zur Beschreibung einer theoretischen Trennstufe sowie die Charakteristiken von Bodenkolonnen präsentiert. Für die Darstellung von strukturierten Packungen sowie die Beschreibung weiterer Einbauten, welche im Rahmen des generischen Kolonnenmodells verwendet werden können, ist auf die Dissertation von WUNDERLICH (2018) zu verweisen.

Massen- bzw. Stoffmengen- und Energieerhaltung

Bei der theoretischen Trennstufe kann die Stoffmenge als Erhaltungsgröße herangezogen werden, da hier keine stoffliche Umwandlung (chemische Reaktion) in einem Bilanzelement erfolgt. Da bei Rektifikationskolonnen die Verweilzeit der Flüssigkeit auf einer theoretischen Trennstufe vergleichsweise hoch ist und die fluiddynamischen Verhältnisse Einfluss auf die Trennaufgabe der jeweiligen theoretischen Trennstufe haben, werden hier dynamische Bilanzen für Masse- bzw. Stoffmenge sowie Energie betrachtet. Nach STEPHAN ET AL. (2013) kann die Stoffmengenbilanz für ein offenes, dynamisches System durch Gleichung (4.22) ausgedrückt werden:

$$\frac{dN}{dt} = \sum_{\text{in}} \dot{N}_{\text{in}} - \sum_{\text{out}} \dot{N}_{\text{out}}. \quad (4.22)$$

Die zeitliche Änderung der Stoffmenge N entspricht dabei der Bilanzierung aller Stoffmengenströme \dot{N} , die in das Bilanzelement ein- (Index in) und austreten (Index out).

Analog dazu werden bei der Energiebilanz die ein- und austretenden Energieströme berücksichtigt. Die zeitliche Veränderung der inneren Energie U eines Bilanzelements wird gemäß STEPHAN ET AL. (2013) mit Gleichung (4.23) beschrieben:

$$\begin{aligned} \frac{dU}{dt} = \dot{Q} + \sum_{\text{in}} (\dot{N}_{\text{in}} \cdot \bar{M}_{\text{in}}) \cdot \left(h_{\text{in}} + \frac{u_{\text{in}}^2}{2} + g \cdot Z_{\text{in}} \right) \\ - \sum_{\text{out}} (\dot{N}_{\text{out}} \cdot \bar{M}_{\text{out}}) \cdot \left(h_{\text{out}} + \frac{u_{\text{out}}^2}{2} + g \cdot Z_{\text{out}} \right). \end{aligned} \quad (4.23)$$

Dabei werden externe Wärmequellen oder -senken wie beispielsweise Isolationsverluste, die bei der Modellierung von kryogenen Prozessen berücksichtigt werden müssen, durch den Term \dot{Q} zusammengefasst. Zusätzlich wird in dieser Gleichung die durch

Stoffmengenströme zu- und abgeführte spezifische Enthalpie h betrachtet. Für die Umrechnung von spezifischen in molare Größen wird die molare Masse \bar{M} verwendet. Zudem ist in Form der Geschwindigkeit u und der Höhenkoordinate Z in Kombination mit der Gravitation g die kinetische und potentielle Energie der ein- und austretenden Stoffmengenströme berücksichtigt. Vereinfachend wird im Rahmen dieser Arbeit sowohl der Einfluss der potentiellen als auch der kinetischen Energie vernachlässigt.

Gleichgewichtsbetrachtungen

Neben den Erhaltungsgleichungen ist für die Berechnung von Trennprozessen durch Rektifikation die Einstellung verschiedener Gleichgewichte von zentraler Bedeutung.

Für eine theoretische Trennstufe n wird angenommen, dass durch ideale Vermischung ein thermisches Gleichgewicht erreicht wird. In diesem Fall nehmen Gasphase $T_{n,\text{vap}}$ und Flüssigphase $T_{n,\text{liq}}$ in der Trennstufe die gleiche Temperatur an und es gilt Gleichung (4.24):

$$T_{n,\text{vap}} = T_{n,\text{liq}}. \quad (4.24)$$

Darüber hinaus gilt ein mechanisches Gleichgewicht auf jeder theoretischen Trennstufe. Die vorliegenden Strömungsverhältnisse können dabei über empirische Korrelationen zur Berechnung eines lastabhängigen Druckverlusts und flüssigen Holdups der entsprechenden Kolonneneinbauten dargestellt werden, welche im weiteren Verlauf dieses Abschnitts für Siebböden vorgestellt werden. Empirische Korrelationen zur Beschreibung der Kolonnenfluiddynamik für Kolonnen mit strukturierten Packungen sind in WUNDERLICH (2018) zu finden. Daraus lassen sich entsprechende Widerstandsbeiwerte C und R berechnen, um mittels Gleichung (4.5) die Kolonnenfluiddynamik darstellen zu können. Eine Begründung für die Verwendung von entweder C oder R für die unterschiedlichen Phasen ist in der Dissertation von WUNDERLICH (2018) gegeben.

Der jeweilige Druck einer theoretischen Trennstufe wird entsprechend Gleichung (4.6) implizit berechnet. Dabei gilt, dass das thermodynamische Volumen V_{td} das maximal mögliche geometrische Volumen V_{td} einnimmt. Für eine theoretische Trennstufe n gilt nach Gleichung (4.25):

$$V_{\text{td}} = V_{\text{geo}} = d_c^2 \cdot \frac{\pi}{4} \cdot \text{HETP}, \quad (4.25)$$

mit dem Kolonnendurchmesser d_c und dem HETP-Wert als Höhe des Bilanzelements. Für diese implizite Bestimmung des Drucks ist es aufgrund der Inkompressibilität von Flüssigkeiten notwendig, dass für eine theoretische Trennstufe sowohl gasförmiger als auch flüssiger Holdup berücksichtigt werden und sich das thermodynamische Volumen (siehe Gleichung (4.26)) entsprechend

$$V_{\text{td}} = V_{n,\text{liq}} + V_{n,\text{vap}} \quad (4.26)$$

aus den Volumina $V_{n,\text{liq}}$ und $V_{n,\text{vap}}$ beider Phasen zusammensetzt. Bei einer theoretischen Trennstufe handelt es sich somit um einen Druckknoten. Auf die modelltechnische Umsetzung des druckgetriebenen Ansatzes in Kombination mit dem generischen Kolonnenmodell wird in Abschnitt 5.3 genauer eingegangen.

Weiter wird auf jeder theoretischen Trennstufe ein Gas-Flüssig-Gleichgewicht, engl.: *vapor-liquid-equilibrium* (VLE), angenommen. Dieses ist erreicht, wenn sich die chemischen Potentiale beider Phasen entsprechen. Voraussetzung dafür ist, dass die Fugazität der Gas- $f_{i,n,\text{vap}}$ sowie der Flüssigphase $f_{i,n,\text{liq}}$ auf der theoretischen Trennstufe n für alle Komponenten i gleich ist [DOHRN 1994]. Diese Bedingung resultiert in Gleichung (4.27) in der *Isofugazitätsbedingung*

$$f_{i,n,\text{vap}} = f_{i,n,\text{liq}}. \quad (4.27)$$

Die Fugazität der entsprechenden Phase der Komponente i wird durch den Partialdruck p_i und den Fugazitätskoeffizient φ_i nach Gleichungen (4.28) und (4.29) berechnet und kann als korrigierter Partialdruck interpretiert werden

$$f_{i,\text{liq}} = p_i \cdot \varphi_{i,\text{liq}} = x_i^* \cdot p \cdot \varphi_{i,\text{liq}} \quad (4.28)$$

$$f_{i,\text{vap}} = p_i \cdot \varphi_{i,\text{vap}} = y_i^* \cdot p \cdot \varphi_{i,\text{vap}}. \quad (4.29)$$

Bei isobaren Bedingungen gilt Gleichung (4.30) zur Beschreibung des VLE:

$$y_i^* \cdot \varphi_{i,\text{vap}} = x_i^* \cdot \varphi_{i,\text{liq}}. \quad (4.30)$$

Der hochgestellte Stern (*) an den jeweiligen Stoffmengenanteilen indiziert dabei den erreichten Gleichgewichtszustand.

Die Kontaktzeit auf einer Trennstufe reicht in der Praxis nicht in allen Betriebsfällen aus, um das stoffliche Gleichgewicht zwischen den eintretenden Stoffströmen herzustellen. Um eine quantitative Aussage über die Nähe des erreichten Stoffaustausches zum Gleichgewichtszustand treffen zu können, hat sich in der technischen Praxis der Bodenkoeffizient nach MURPHREE (1925), der *Murphree*-Wirkungsgrad η_{Mu} , bewährt. Dieser etabliert für Bodenkolonnen eine Beziehung zwischen theoretischen und praktischen Trennstufen n_{real} und n_{theo} und wird nach Gleichung (4.31) berechnet:

$$\eta_{\text{Mu}} = \frac{y_{i,n} - y_{i,n-1}}{y_{i,n}^* - y_{i,n-1}} = \frac{n_{\text{theo}}}{n_{\text{real}}}. \quad (4.31)$$

Der Murphree-Wirkungsgrad η_{Mu} liefert dabei einen Zusammenhang zwischen den realen und idealen Unterschieden der Stoffmengenanteile der Komponente i zweier Trennstufen n und $n - 1$. Der tatsächlich erreichte Stoffmengenanteil der Gasphase der Komponente i auf Trennstufe n lässt sich durch Gleichung (4.32) ausdrücken:

$$y_{i,n} = \eta_{\text{Mu}} \cdot \left(x_{n,i}^* \cdot \frac{\varphi_{i,\text{liq}}}{\varphi_{i,\text{vap}}} - y_{i,n-1} \right) + y_{i,n-1}. \quad (4.32)$$

Korrelationen zur Berechnung von Druckverlust und Holdup für Siebböden

Im weiteren Verlauf des Abschnitts werden die Korrelationen für Siebbodenkolonnen näher betrachtet, welche im Rahmen dieser Arbeit in das generische Kolonnenmodell integriert werden. Zunächst wird hier auf die Berechnung des Druckverlusts eingegangen, bevor die Korrelationen für den flüssigen Holdup einer Trennstufe vorgestellt werden. Der nachfolgende Abschnitt enthält Teile aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2021a), welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

Druckverlust Der gesamte Druckverlust Δp_{tray} , der sich für den Gasstrom in einer Siebbodenkolonne beim Durchströmen eines Bodens ergibt, setzt sich gemäß Gleichung (4.33)

$$\Delta p_{\text{tray}} = \Delta p_{\text{dry}} + \Delta p_{\text{liq}} \quad (4.33)$$

additiv aus dem trockenen Druckverlust Δp_{dry} und dem Druckverlust Δp_{liq} , welcher aus der Höhe der klaren Flüssigkeit auf dem betrachteten Boden resultiert, zusammen [CHARLES C. HERRON ET AL. 1988, ZUIDERWEG 1982, D. L. BENNETT ET AL. 1983]. Δp_{liq} wird im Folgenden als Druckverlust durch die Flüssigkeit bezeichnet. Der trockene Druckverlust Δp_{dry} (siehe Gleichung (4.34)) ist als

$$\Delta p_{\text{dry}} = \frac{1}{2} \cdot \zeta \cdot F_{\text{h}}^2 \quad (4.34)$$

definiert. Dabei beschreibt die Konstante ζ den Durchflussbeiwert der Siebbodenlöcher [STICHLMAIR ET AL. 2021]. F_{h} ist der F -Faktor, bezogen auf die perforierte Fläche des Bodens. Dieser setzt sich, beschrieben durch Gleichung (4.35), aus dem Produkt aus der Gasgeschwindigkeit $v_{\text{vap,h}}$ durch die Löcher der perforierten Fläche und der Wurzel der Gasdichte ρ_{vap} zusammen [CHARLES C. HERRON ET AL. 1988, ZUIDERWEG 1982, D. L. BENNETT ET AL. 1983]:

$$F_{\text{h}} = v_{\text{vap,h}} \cdot \sqrt{\rho_{\text{vap}}} \quad (4.35)$$

Der Druckverlust Δp_{liq} durch die Flüssigkeit ist in Gleichung (4.36) als

$$\Delta p_{\text{liq}} = h_{\text{liq}} \cdot \Delta \rho \cdot g \quad (4.36)$$

definiert. $\Delta \rho$ entspricht dabei der Differenz der Dichten der Gas- und Flüssigphase. h_{liq} ist definiert als die Höhe der klaren Flüssigkeit auf dem Boden [ZUIDERWEG 1982]. Diese kann entsprechend Gleichung (4.37) berechnet werden:

$$h_{\text{liq}} = h_{\text{W}} + h_{\text{oW}} \quad (4.37)$$

Hierbei entspricht h_W der Wehrhöhe des Bodens und h_{oW} der Wehrüberlaufhöhe. h_{oW} wird entsprechend Gleichung (4.38) berechnet:

$$h_{oW} = \frac{C}{g^{\frac{1}{3}}} \cdot \left(\frac{\dot{V}_{\text{liq}}}{l_w \cdot \varepsilon_{\text{liq}}} \right)^{\frac{2}{3}} \cdot \left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\Delta \rho} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (4.38)$$

Es handelt sich um eine modifizierte Form der Francis Gleichung zur Überströmung eines Wehrs. Beim Parameter C handelt es sich um einen konstanten Wert in Abhängigkeit des betrachteten Kolonnentyps [ZUIDERWEG 1982, CHARLES C. HERRON ET AL. 1988, D. L. BENNETT ET AL. 1983]. ε_{liq} entspricht dem relativen Flüssiganteil in der Zweiphasenschicht [STICHLMAIR ET AL. 2021]. Im Rahmen dieser Arbeit wird für ε_{liq} ein konstanter Wert von eins gewählt. Weiter entspricht l_w der Wehrlänge. Bei \dot{V}_{liq} handelt es sich um den Flüssigkeitsvolumenstrom quer über den Boden.

Darüber hinaus erlaubt diese Formulierung die Betrachtung von Siebbodengeometrien mit mehreren Ablaufschichten durch die Anpassung des Volumenstroms \dot{V}_{liq} , der Wehrhöhe h_W und der Wehrlänge l_w entsprechend der betrachteten Anordnung an Ablaufschichten. Abbildung 4.7 zeigt eine schematische Darstellung einer Siebbodenkolonne mit einem Ablaufschacht.

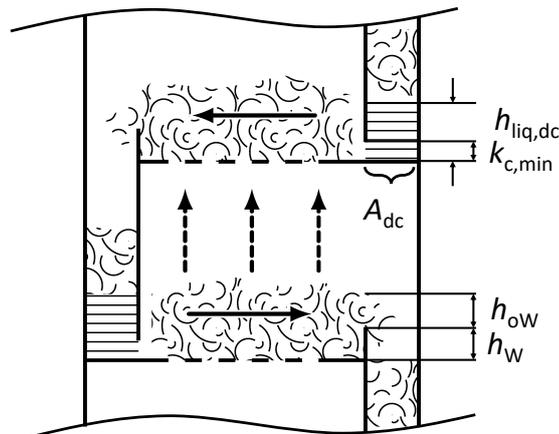


Abbildung 4.7: Schematische Darstellung einer Siebbodenkolonne mit einem Ablaufschacht nach STICHLMAIR ET AL. (2021)

Hier ist der flüssige Holdup im Ablaufschacht und dessen Zweiphasenschicht sowie die des Bodens dargestellt. Zusätzlich sind die Strömungswege des Gases und der Flüssigkeit mit gestrichelten oder durchgezogenen Pfeilen dargestellt. Darüber hinaus sind relevante Größen für die Berechnung des Druckverlusts und des flüssigen Holdups gekennzeichnet.

Flüssiger Holdup Der gesamte flüssige Holdup h_{tray}^n eines Siebbodens n setzt sich additiv aus zwei Komponenten, dem Holdup, der sich exklusiv auf dem Boden befindet h_{tray}^n sowie der des Ablaufschachts des darüberliegenden Bodens $n + 1$, h_{dc}^{n+1} zusammen. h_{tray}^n

wird durch das Produkt aus der Höhe der klaren Flüssigkeit h_{liq} (siehe Gleichung (4.37)) und der Querschnittsfläche A_{tray} des Bodens (siehe Gleichung (4.39)) berechnet:

$$h_{\text{tray}}^n = h_{\text{liq}}^n \cdot A_{\text{tray}}. \quad (4.39)$$

A_{tray} wird durch Gleichung (4.40) bestimmt:

$$A_{\text{tray}} = A_c - 2 \cdot A_{\text{dc}}. \quad (4.40)$$

Dabei entspricht A_c der Querschnittsfläche der Kolonne und A_{dc} der des Ablaufschachts. Dessen flüssiger Holdup h_{dc}^{n+1} wird nach Gleichung (4.41) wie folgt berechnet:

$$h_{\text{dc}}^{n+1} = A_{\text{dc}} \cdot h_{\text{liq,dc}}^{n+1}. \quad (4.41)$$

$h_{\text{liq,dc}}^{n+1}$ entspricht der Höhe der Flüssigkeit im betrachteten Ablaufschacht. Diese sammelt sich dort als Resultat des Strömungswiderstands der Flüssigkeit von Ablaufschacht $n+1$ über dem Boden n und dessen Wehr. $h_{\text{liq,dc}}^{n+1}$ wird entsprechend Gleichung (4.42) berechnet:

$$h_{\text{liq,dc}}^{n+1} = \frac{\Delta p_{\text{tray}}^{(n+1)}}{\Delta \varrho^n \cdot g} + h_{\text{liq}}^n + h_c^{n+1}. \quad (4.42)$$

Hierbei ist h_c die Höhe der Flüssigkeit, welche sich durch den Strömungswiderstand des Einlaufspalts ansammelt. Dieser ist nach Gleichung (4.43) als

$$h_c^{n+1} = \frac{\varrho_{\text{liq}}^n}{\Delta \varrho^n} \cdot \left(\frac{X}{g} \cdot \frac{\dot{V}_{\text{liq}}^n}{l_w^n \cdot k_{c,\text{min}}^{n+1}} \right)^2 \quad (4.43)$$

definiert. X entspricht einer anwendungsspezifischen Konstante und $k_{c,\text{min}}$ ist der kleinste Abstand zwischen der Oberkante des Eintrittspalts und dem Einlaufwehr. h_{liq} wird hier als Strömungswiderstand hervorgerufen durch die klare Flüssigkeit auf dem Siebboden n interpretiert. Die Größe $\frac{\Delta p_{\text{tray}}^{(n+1)}}{\Delta \varrho^n \cdot g}$ kann als Strömungswiderstand zur Überwindung des Druckgradienten $\Delta p_{n-(n+1)} > 0$ verstanden werden [COLWELL 1981].

Der gesamte flüssige Holdup h_{tray}^n des Bodens n ist entsprechend Gleichung (4.44) als Summe von h_{tray}^n und h_{dc}^{n+1} definiert:

$$h_{\text{tray}}^n = h_{\text{tray}}^n + h_{\text{dc}}^{n+1}. \quad (4.44)$$

Details zur modelltechnischen Umsetzung und Implementierung des generischen Kolonnenmodells sind in Abschnitt 5.3 zu finden. Dabei liegt der Fokus auf dem hierarchischen Aufbau des Modells sowie auf der Verwendung der beschriebenen Korrelationen im Kontext des druckgetriebenen Ansatzes. Weiter gilt es, die präsentierten Korrelationen entsprechend zu regularisieren, um deren Lösbarkeit über den gesamten Betriebsbereich der Anlage zu garantieren.

4.3.3 Wärmeübertrager

Im folgenden Abschnitt werden die grundlegenden Zusammenhänge des generischen Wärmeübertragermodells, welches für die virtuelle ASU verwendet wird, beschrieben. Auf Details zur modell- sowie softwaretechnischen Implementierung wird in Abschnitt 5.4 eingegangen. Eine detaillierte Herleitung des Modells ist in RÖSSLER ET AL. (2022) gegeben, welche bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

Die Modellierung eines Wärmeübertragers im Rahmen der dynamischen Simulation erfolgt durch Erhaltungsgleichungen für Masse, Impuls und Energie, welche vereinfachend eindimensional entlang der Hauptströmungsrichtung der Prozessströme diskretisiert werden. Für die Diskretisierung wird die Finite-Volumen-Methode verwendet. Darüber hinaus wird für den Wärmeübergang zwischen Metallmasse und Prozessstrom ein *common wall* Ansatz verwendet [HASELER 1983]. Die zentralen zugrunde liegenden Gleichungen werden nachfolgend im Detail erläutert.

Massen- bzw. Stoffmengenerhaltung eines Prozessstroms

Obwohl in der Thermodynamik klassischerweise die Masse als Erhaltungsgröße definiert ist, wird für dieses Modell stattdessen die Stoffmengenerhaltung herangezogen. Das ist gerechtfertigt, da in den Bilanzelementen keine stoffliche Umwandlung erfolgt und somit auch die Stoffmenge eine Erhaltungsgröße ist. Die Erhaltung der Stoffmenge eines Prozessstroms i eines diskreten Volumenelements j kann entsprechend Gleichung (4.45) formuliert werden:

$$\frac{dN_{i,j}}{dt} = \dot{N}_{i,j,\text{in}} - \dot{N}_{i,j,\text{out}} . \quad (4.45)$$

Auf der linken Seite der Gleichung wird die Veränderung der Stoffmenge $N_{i,j}$ über die Zeit betrachtet. $\dot{N}_{i,j,\text{in}}$ und $\dot{N}_{i,j,\text{out}}$ repräsentieren die ein- und austretenden Stoffmengenströme. Während des Betriebs strömen die Prozessströme kontinuierlich durch den Wärmeübertrager. Typischerweise kommt es dabei zu kurzen Verweilzeiten des Fluids im Apparat. Daher kann diese in Gleichung (4.46) als quasistationär angenommen werden, was zur folgenden Vereinfachung von Gleichung (4.45) führt [SASS & MITSOS 2019]:

$$0 = \dot{N}_{i,j,\text{in}} - \dot{N}_{i,j,\text{out}} . \quad (4.46)$$

Energieerhaltung eines Prozessstroms

Die Erhaltung der inneren Energie eines Prozessstroms i für ein Volumenelement j erfolgt entsprechend Gleichung (4.47):

$$\frac{dU_{i,j}}{dt} = \dot{H}_{i,j,\text{in}} - \dot{H}_{i,j,\text{out}} + \sum_{s=1}^{S_i} [\dot{Q}_{\alpha,i,s,j}] . \quad (4.47)$$

Bei der Veränderung der inneren Energie $U_{i,j}$ über die Zeit werden die ein- und austretenden Enthalpieströme $\dot{H}_{i,j,\text{in}}$ und $\dot{H}_{i,j,\text{out}}$ sowie der durch konvektiven Wärmeübergang übertragene Wärmestrom $\dot{Q}_{\alpha,i,s,j}$ berücksichtigt. Dabei handelt es sich um den Wärmestrom, der zwischen dem Volumenelement j des Prozessstroms i und der benachbarten Metallwärmekapazität s über Konvektion (Index α) übertragen wird. Dabei werden alle angrenzenden Metallmassen S_i berücksichtigt. Auch hier ist die Annahme der Quasistationarität gerechtfertigt [SASS & MITSOS 2019]. Daher kann Gleichung (4.47) zu Gleichung (4.48) vereinfacht werden.

$$0 = \dot{H}_{i,j,\text{in}} - \dot{H}_{i,j,\text{out}} + \sum_{s=1}^{S_i} \left[\dot{Q}_{\alpha,i,s,j} \right] \quad (4.48)$$

Energieerhaltung der Metallwärmekapazität

Analog zu den Prozessströmen wird auch die Metallwärmekapazität mittels Finite-Volumen-Methode eindimensional in die Hauptströmungsrichtung der Prozessströme diskretisiert. Die zeitliche Veränderung der Temperatur $\frac{dT_s}{dt}$ des Metalls ist maßgebend für das dynamische Verhalten des Wärmeübertragers, daher wird diese in Gleichung (4.49) entsprechend bilanziert. Die Veränderung der Metalltemperatur T_s eines Volumenelements j kann durch folgende Beziehung

$$\frac{dT_{s,j}}{dt} = \frac{1}{\rho_{s,j} c_{s,j}} \cdot \left[\dot{Q}_{\lambda,s,j,L} - \dot{Q}_{\lambda,s,j,R} - \sum_{i=1}^{I_s} \left[\dot{Q}_{\alpha,i,s,j} \right] \right], \quad (4.49)$$

beschrieben werden. Dabei entspricht ρ_s der Dichte und c_s der Wärmekapazität des Metalls. $\dot{Q}_{\lambda,s,j,L}$ und $\dot{Q}_{\lambda,s,j,R}$ repräsentieren die Wärmeleitung durch das Metall in die benachbarten Volumenelemente links L und rechts R von j . Beim konvektiven Wärmeübergang werden alle angrenzenden Prozessströme I_s betrachtet.

Konvektiver Wärmeübergang

Der Wärmestrom, welcher in einem Volumenelement j zwischen einer Metallwärmekapazität s und dem Prozessstrom i übertragen wird, kann mit Gleichung (4.50)

$$\dot{Q}_{\alpha,i,s,j} = A_{\text{eff},i,s,j} \cdot \alpha_{i,s,j} \cdot (T_{s,j} - T_{i,j}) \quad (4.50)$$

als Produkt der effektiven Wärmeübertragungsfläche $A_{\text{eff},i,s,j}$, des Wärmeübergangskoeffizienten $\alpha_{i,s,j}$ sowie der Temperaturdifferenz zwischen der Metalltemperatur $T_{s,j}$ und der Temperatur $T_{i,j}$ des Prozessstroms i berechnet werden. Diese Temperaturdifferenz ist die Triebkraft für den konvektiven Wärmeübergang. Die Bestimmung der Parameter $\alpha_{i,s,j}$ und $A_{\text{eff},i,s,j}$ ist essentiell für die Modellgranularität. Abhängig von der gewählten Berechnungsmethode zur Bestimmung dieser Größen variiert die Komplexität des Wärmeübertragermodells. Die für die höchste Modellgranularität der virtuellen

ASU verwendeten Korrelationen sowie die Einflüsse der PFHE-Geometrie werden in Abschnitt 5.4 beschrieben.

Impulserhaltung eines Prozessstroms

In der (dynamischen) Prozesssimulation ist es üblich, die Impulserhaltung eines Prozessstroms i quasistationär zu betrachten [SASS & MITSOS 2019]. Darüber hinaus werden in diesem Modell die Einflüsse der Gravitation vernachlässigt. Daher lässt sich die Impulserhaltung (siehe Gleichung (4.51)) wie folgt berechnen:

$$\frac{\partial p_i}{\partial x} = -\frac{\partial(\rho_i v_i^2)}{\partial x} + \frac{\partial \tau_i}{\partial x}. \quad (4.51)$$

Die Änderung des Drucks p_i über die Länge des Wärmeübertragers wird als Summe der Änderung des Impulses ($\rho_i v_i^2$) sowie des Einflusses der Reibung τ_i beschrieben. Da in Gleichung (4.51) nur die Hauptströmungsrichtung betrachtet wird, lässt sich diese Beziehung durch Gleichung (4.52) als Korrelation für den Druckverlust

$$\underbrace{\frac{\Delta p_i}{\Delta x}} = \underbrace{\frac{\Delta p_{i,\text{acc}}}{\Delta x}} + \underbrace{\frac{\Delta p_{i,\text{fric}}}{\Delta x}} \quad (4.52)$$

formulieren. Der Gesamtdruckverlust Δp_i setzt sich zusammen aus einem Beschleunigungsanteil $\Delta p_{i,\text{acc}}$ sowie einem Anteil durch Reibung $\Delta p_{i,\text{fric}}$ zusammen. Die für PFHEs relevante empirische Druckverlustkorrelation sowie ihre Einbindung in den druckgetriebenen Simulationsansatz ist in Abschnitt 5.4 beschrieben.

Zur Veranschaulichung der vorgestellten Zusammenhänge sind in Abbildung 4.8 die Metallwärmekapazität j (grau) sowie der Prozessstrom i (rot), welcher mit dem Metall in Kontakt steht, dargestellt. Darüber hinaus sind die Volumenelemente $j - 1$ und $j + 1$ der Metallwärmekapazität abgebildet, um die axiale Wärmeleitung schematisch zu visualisieren.

4.3.4 PI-Regler

Neben Modellen für die verfahrenstechnischen Grundoperationen benötigt die virtuelle ASU auch die Möglichkeit, die Basisregelung der Anlage abbilden zu können. Dazu werden bei verfahrenstechnischen Anlagen typischerweise Proportional-Integral-Regler, kurz PI-Regler, verwendet. Die Basisregelung einer ASU beinhaltet alle an einer Anlage angebrachten Regelkreise, die notwendig sind, um einen sicheren Betrieb der Anlage sicherzustellen. Die Funktionsweise eines geschlossenen Regelkreises ist in Abbildung 4.9 schematisch dargestellt.

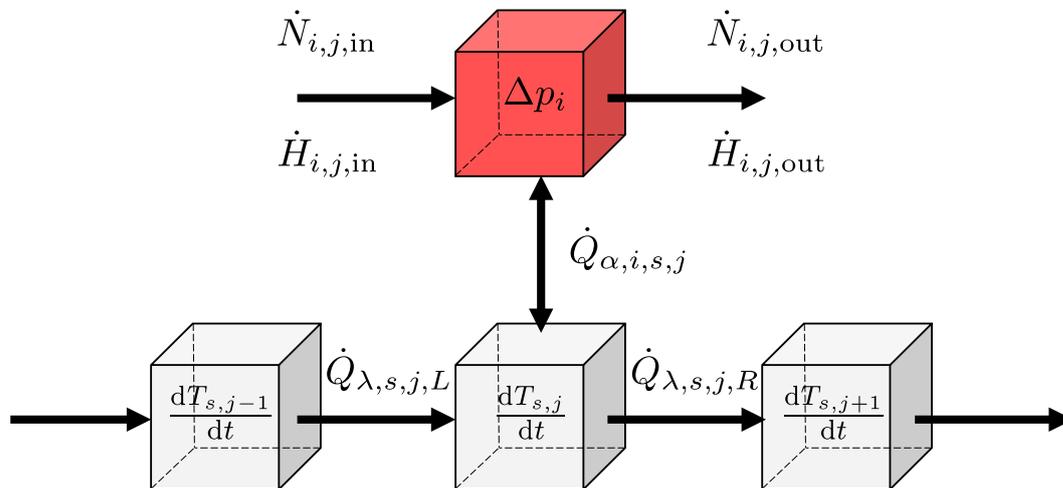


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der Bilanzgleichungen des Wärmeübertragermodells nach RÖSSLER ET AL. (2022)

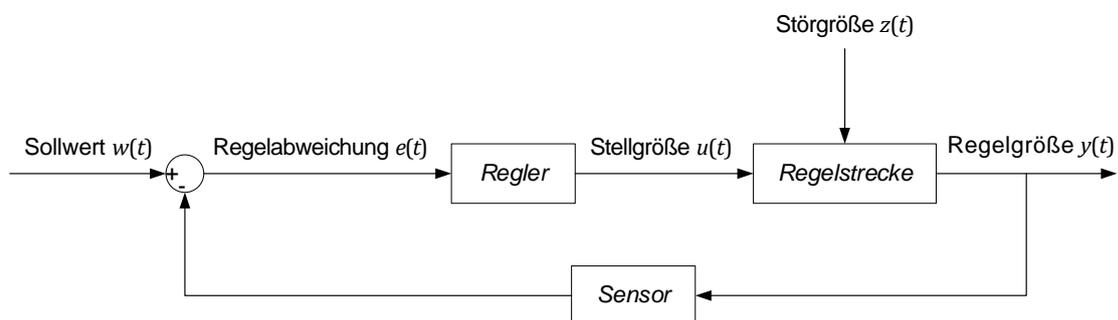


Abbildung 4.9: Blockschaltbild eines geschlossenen Regelkreises nach SEBORG ET AL. (2017)

Durch einen stetigen Abgleich zwischen einem Sollwert $w(t)$ und dem tatsächlichen Istwert der Regelgröße $y(t)$ wird durch einen Regler ein Wert für eine Stellgröße $u(t)$, beispielsweise eine Ventilstellung, dementsprechend bestimmt, sodass sich Ist- und Sollwert annähern, bis diese übereinstimmen. Die Differenz dieser Werte in Gleichung (4.53)

$$e(t) = w(t) - y(t) \quad (4.53)$$

wird auch Regelabweichung $e(t)$ genannt. Die Regelgröße $y(t)$ wird typischerweise über einen Sensor aus einer Regelstrecke abgegriffen. Darüber hinaus können auch Störgrößen $z(t)$ auf die Regelstrecke einwirken, die den aktuellen Betriebszustand beeinflussen und durch den verwendeten Regelkreis unter Kontrolle gebracht werden müssen. Beispielhaft für eine ASU kann hier die Außentemperatur genannt werden. Für die Berechnung der Stellgröße $u(t)$ in Abhängigkeit der Regelabweichung $e(t)$ wird die in Gleichung (4.54) definierte Übertragungsfunktion

$$u(t) = K_P \cdot e(t) + \frac{K_P}{T_N} \cdot \int_0^t e(t) dt \quad (4.54)$$

verwendet [SEBORG ET AL. 2017]. Bei K_P handelt es sich um die Verstärkung, die charakteristisch für den P-Anteil des Reglers ist. T_N entspricht der Nachstellzeit, welche die kennzeichnende Größe für den I-Anteil ist. Die Wahl dieser Parameter ist maßgeblich für die Einstellung des Reglers auf das gewünschte Betriebsverhalten. Geeignete Methoden für die Bestimmung von K_P und T_N können u.a. SEBORG ET AL. (2017), ÅSTRÖM & HÄGGLUND (2006) oder SKOGESTAD (2001) entnommen werden. Auf die verwendete Methode für die Wahl der Parameter der Regelkreise der Basisregelung wird im entsprechenden Abschnitt des Anwendungsfalls (siehe Kapitel 6) hingewiesen.

Im realen Anlagenbetrieb kann es vorkommen, dass der Regelbereich für die durch Gleichung (4.54) berechnete Stellgröße $u(t)$ nicht ausreichend groß ist, um die vorliegende Regelabweichung $e(t)$ auszugleichen. Der tatsächliche Reglerausgang nimmt folglich bei bestehender Regelabweichung $e(t) \neq 0$ den vorgegebenen Maximal- oder Minimalwert u_{\max} oder u_{\min} an. Der Regler befindet sich in der Sättigung. Das kann dazu führen, dass der I-Anteil durch die fortlaufende Integration (siehe Gleichung (4.54)) einer Regelabweichung $e(t) \neq 0$ über die Zeit beliebig groß wird. Das Resultat daraus ist eine entsprechende Verzögerung der Reaktion des Reglers bei einer Änderung des Sollwerts in die entgegengesetzte Richtung. Bei dieser ungewollten Verzögerung der Reglerantwort wird in der Literatur von *Integral* oder *Reset Windup* gesprochen [SEBORG ET AL. 2017, ÅSTRÖM & HÄGGLUND 2006]. Um dies zu verhindern, gibt es Möglichkeiten, den I-Anteil zu begrenzen und somit das Divergieren der Integration der Regelabweichung $e(t)$ über die Zeit zu vermeiden. Diese Methodik wird *Anti-Reset Windup* genannt [SEBORG ET AL. 2017, ÅSTRÖM & HÄGGLUND 2006].

Für das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Modell eines PI-Reglers wird dafür die *Back Calculation* Methode nach ÅSTRÖM & HÄGGLUND (2006) verwendet. Diese wird anhand des in Abbildung 4.10 dargestellten Blockschaltbilds des PI-Reglers erläutert.

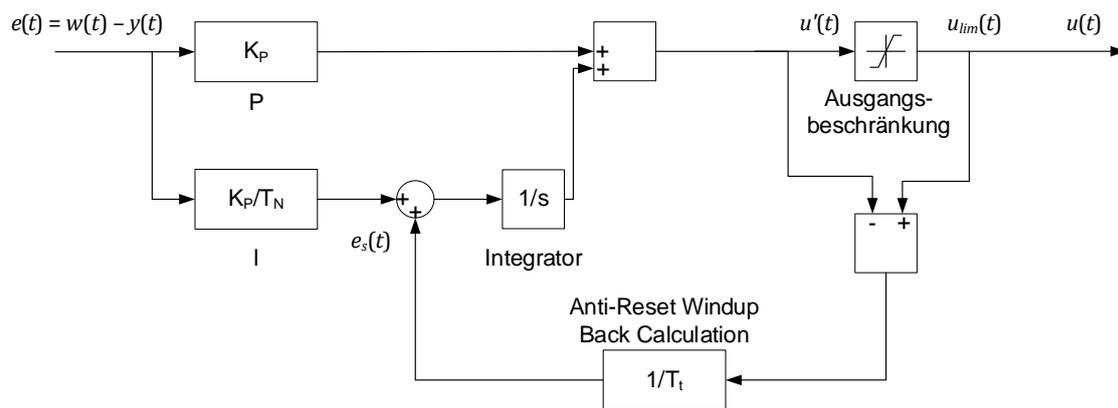


Abbildung 4.10: Blockschaltbild eines PI-Reglers mit der Back Calculation Methode nach ÅSTRÖM & HÄGGLUND (2006)

Die in Gleichung (4.54) dargestellte Übertragungsfunktion wird dabei in Gleichung (4.55) folgendermaßen modifiziert:

$$u(t) = \max \left(u_{\min}, \min \left(u_{\max}, K_P \cdot e(t) + \frac{K_P}{T_N} \cdot \int_0^t (e(t) + e_s(t)) dt \right) \right). \quad (4.55)$$

Das zusätzliche Fehlersignal $e_s(t)$ ist nach Gleichung (4.56) als Differenz

$$e_s(t) = \frac{1}{T_t} \cdot (u_{\lim}(t) - u'(t)) \quad (4.56)$$

definiert. Bei $u'(t)$ handelt es sich um die nach Gleichung (4.54) berechnete Stellgröße ohne Ausgangsbeschränkung. $u_{\lim}(t)$ entspricht dem begrenzten Reglerausgang $u(t)$ nach Gleichung (4.55). Diese Differenz wird gewichtet mit einer zusätzlichen Verstärkung $1/T_t$ vor dem Integrator der Regelabweichung rückgeführt. Bei T_t handelt es sich um eine zusätzliche Zeitkonstante.

Befindet sich der Regler nicht in der Sättigung, nimmt das Fehlersignal $e_s(t)$ den Wert null an und beeinflusst somit nicht das normale Regelverhalten. Befindet sich die berechnete Stellgröße $u'(t)$ außerhalb des definierten Regelbereichs, nimmt $e_s(t)$ einen Wert ungleich null an und konvergiert gegen den notwendigen Wert, um eine Regelabweichung außerhalb des Regelbereichs auszugleichen.

Um die Teilmodelle der virtuellen ASU zu implementieren, wird die Simulationsinfrastruktur SMI@LE verwendet. Diese wird im nachfolgenden Kapitel vorgestellt. Darüber hinaus wird im Folgenden auf Modellierungsdetails und Regularisierungen der benötigten Modelle eingegangen.

5 Modellierung und Regularisierung

Dieses Kapitel präsentiert die modelltechnische Umsetzung der virtuellen ASU und deren Teilmodelle. Dabei wird zunächst auf die verwendete Modellinfrastruktur SMI@LE eingegangen. Danach liegt der Fokus auf den in Abschnitt 4.3 vorgestellten Modellen (siehe Abbildung 4.4 Ebene der Grundoperationen). Basierend auf den dort eingeführten grundlegenden Beziehungen werden Modellierungsdetails, die Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz sowie notwendige Regularisierungen detailliert beschrieben.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Modellierungsdetails ermöglichen die Kombination der Modelle der Grundoperationen zu beliebigen Drucknetzwerken. Somit ist die Darstellung beliebiger ASU-Topologien durch die virtuelle ASU möglich. Durch den modular-hierarchischen Aufbau der einzelnen Modelle kann die Modellgranularität auf den jeweiligen Anwendungsfall angepasst werden. Darüber hinaus garantieren die verwendeten Regularisierungen die Lösbarkeit der Modelle über den gesamten Betriebsbereich der betrachteten ASU-Topologie. Somit werden die in Kapitel 6 präsentierten Detailstudien und Erkenntnisgewinne ermöglicht. Grundlage dafür ist die Modellierungsinfrastruktur SMI@LE, welche im Folgenden präsentiert wird.

5.1 Modellierungsinfrastruktur – SMI@LE

Für die Implementierung der Modelle der virtuellen ASU wird die SMI@LE-Infrastruktur verwendet. Dabei handelt es sich um eine universelle Modellierungsumgebung, die es erlaubt, die detaillierten Fachkenntnisse über Prozess- und Equipmentdesign in Simulationsmodellen zu bündeln. Der nachfolgende Abschnitt enthält Teile aus den Artikeln von KENDER ET AL. (2018) und KENDER ET AL. (2019), welche bereits in Fachjournalen veröffentlicht wurden.

SMI@LE-Modelle sind in der Lage, unterschiedliche Aspekte während des Lebenszyklus einer Anlage (siehe Abbildung 4.2) darzustellen. Darunter fallen klassische verfahrenstechnische Aufgaben wie Prozess- und Equipmentdesign mittels stationärer Prozesssimulation oder -optimierung. Neue Trends in der chemischen Industrie erfordern jedoch eine kontinuierliche Anpassung der Modelle. Flexibler Anlagenbetrieb oder die Entwicklung von Regelungsstrategien im Rahmen von APC stellen neue Herausforderungen mit komplexen Anforderungen an die notwendigen (dynamischen) Simulationsmodelle dar.

Dazu müssen diese numerisch robust, effizient sowie vorausschauend im Bezug auf Wartbarkeit, Wiederverwendbarkeit und Herstellerunabhängigkeit sein [THOMAS 21.11.2017].

Die SMI@LE-Infrastruktur erfordert lediglich einen ISO-C++-Compiler. Daher kann diese auf einer Vielzahl von Plattformen (siehe Abbildung 5.1) verwendet werden.

SMI@LE-Modelle werden dem Anwender in Form von dynamischen Programmibibliotheken, engl.: *shared libraries*, zur Verfügung gestellt. Da die typische Zielplattform Windows ist, handelt es sich meistens um *dynamic link libraries*, kurz *.dll*. Anwendungen sind beispielsweise die Bereitstellung und Simulation von SMI@LE-Modellen auf Linux-basierten Webservern oder am Standort der Anlage in Kombination mit dem Prozessleitsystem oder auf Einplatinencomputern wie dem *Raspberry Pi*. Generell können SMI@LE-Modelle in verschiedenen Prozesssimulatoren verwendet werden, die bei Linde im Einsatz sind (OPTISIM[®] und UniSim[®] Design). Alternativ dazu wird derzeit eine Modellierungsumgebung auf der Grundlage von Python[™] entwickelt, die auf innovative eingebettete modellbasierte Anwendungen abzielt. Aufgrund der vielfältigen Konnektivität kann Python[™] ebenfalls dazu genutzt werden, um Schnittstellen zwischen den Simulationsmodellen und einer realen Anlage zu implementieren. Entsprechend der Nutzung können die verwendeten Daten inhärent aufbereitet und der Anlage oder dem Modell zur Verfügung gestellt werden. Dadurch kann ein bidirektionaler Datentransfer zwischen Modell und Anlage etabliert werden. Abbildung 5.1 visualisiert den Ablauf der Erstellung eines SMI@LE-Modells und dessen Integration in eine Prozesssimulationssoftware sowie der Kopplung an eine Anlage [THOMAS 21.11.2017].

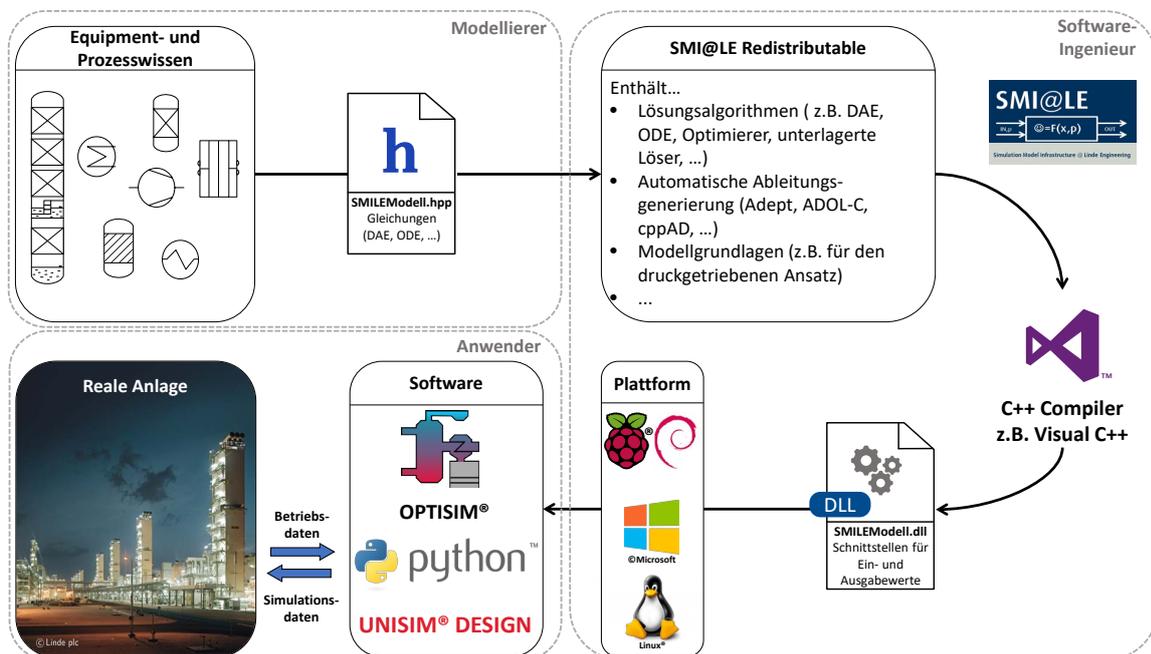


Abbildung 5.1: Typischer Ablauf für die Erstellung, Integration und Anwendung eines SMI@LE-Modells in herkömmliche Software für Prozesssimulation sowie deren Kopplung an eine Realanlage nach KENDER ET AL. (2018)

Aus softwaretechnischer Sicht ist ein SMI@LE-Modell eine C++-Klasse, die von einer generischen Basisklasse abgeleitet ist. Wie in Abbildung 5.1 zu sehen ist, werden die

Modellgleichungen zur Beschreibung der gewünschten Grundoperation in einer C++-Header-Datei implementiert. SMI@LE enthält standardisierte Schnittstellen für die Übergabe von Prozessströmen, Parameter oder die Einbindung von Stoffdatenmethoden. Der streng objektorientierte Aufbau von SMI@LE-Modellen ermöglicht einen modular-hierarchischen Modellierungsansatz. Darüber hinaus kann die C++-Klassenvererbung für die Erstellung von SMI@LE-Modellvorlagen verwendet werden, die während der Laufzeit weiter spezialisiert oder angepasst werden können. Ein Beispiel dafür ist das generische Wärmeübertragemodell, welches in Abschnitt 5.4 vorgestellt wird.

Zur Erstellung eines SMI@LE-Modells (dynamische Programmibibliothek) ist lediglich ein C++-Compiler erforderlich. Die Modellformulierung erfordert keine weiteren Softwarerlizenzen oder kommerziellen Bibliotheksabhängigkeiten von Drittanbietern. Daher gibt es aus diesem Aspekt keine Hindernisse hinsichtlich der Nutzbarkeit und Verfügbarkeit von SMI@LE-Modellen. Darüber hinaus sind SMI@LE-Modelle durch die Verwendung einer standardisierten und herstellerunabhängigen Programmiersprache (ISO C++) vergleichsweise einfach zu warten und damit zukunftsfähig.

Technisch gesehen handelt es sich bei der SMI@LE-Infrastruktur um eine C++/Python™ Bibliothek, die als *SMI@LE Redistributable* bezeichnet wird. Diese beinhaltet softwaretechnische Details wie die automatische Erstellung von Ableitungen, die Behandlung von Unstetigkeiten sowie Schnittstellen für die Einbindung von Stoffdatenmodellen oder mathematischen Lösungsalgorithmen, engl.: *solver*. Ableitungen können beispielsweise mit der ADOL-C- [NAUMANN & SCHENK 2012], ADEPT- [HOGAN 2014] oder cppAD-Bibliothek erzeugt werden [BELL 2012]. Zusätzlich enthält das SMI@LE Redistributable Bibliotheken für die Methoden zur Modellierung der druckgetriebenen Strömung nach THOMAS ET AL. (2020) und weitere relevante Funktionalitäten, die für die Entwicklung von Simulationsmodellen notwendig sind. Durch den modularen Aufbau können weitere Funktionen bei Bedarf hinzugefügt werden.

Durch das Kapseln der Implementierungsdetails in der SMI@LE Redistributable können sich sowohl Modellierer als auch Anwender auf ihre eigentlichen Aufgaben konzentrieren, ohne ein tieferes Verständnis von Softwaretechnik besitzen zu müssen. Die Wartung und Weiterentwicklung der SMI@LE-Bibliothek wird durch entsprechende Softwareexperten durchgeführt.

Aus mathematischer Sicht ist ein SMI@LE-Modell eine mathematische Beschreibung eines technischen oder physikalischen Systems, z.B. verfahrenstechnische Grundoperation. Das mathematische Modell kann entweder eine Funktion, ein System aus gewöhnlichen Differentialgleichungen, engl.: *ordinary differential equation* (ODE), ein DAE-System oder ein Optimierungsproblem sein. Das SMI@LE-Modell hat Eingabewerte, die u.a. Modellparameter enthalten können und verarbeitet diese entsprechend den funktionalen Zusammenhänge zu Ausgabewerten oder Residuen. Beide werden über definierte Softwareschnittstellen an die jeweilige Simulationssoftware übergeben [THOMAS 21.11.2017].

In dieser Infrastruktur werden die Modelle der virtuellen ASU entwickelt und bereitgestellt. Im Rahmen dieser Arbeit werden diese durch die Linde proprietäre Prozesssimulationssoftware OPTISIM® (siehe Abschnitt 4.2.1) ausgeführt.

Die nachfolgenden Abschnitte befassen sich mit der modelltechnischen Umsetzung der Ebene der Grundoperationen in Abbildung 4.4. Dabei liegt der Fokus auf charakteristischen Implementierungsdetails sowie der Anwendung der Modelle im Kontext des druckgetriebenen Ansatzes nach THOMAS ET AL. (2020).

5.2 Modellierung von Pressure-Flow-Zusammenhängen

Zunächst wird auf die modelltechnische Umsetzung der in Abschnitt 4.3.1 vorgestellten Modelle für Förderung und den Transport von Fluiden eingegangen. Der Fokus liegt dabei auf der Formulierung der Modelle unter der Berücksichtigung des generischen quasistationären pressure-flow-Zusammenhang in Gleichung (4.5). Die Grundlage der entwickelten Maschinen- oder Ventilmodelle ist dabei das in Abschnitt 4.2.2 vorgestellte dp-Modell. Die charakteristischen pressure-flow-Zusammenhänge sowie die benötigte oder frei werdende Leistung der Maschinen werden dabei in zusätzlichen Modellen berechnet und in entsprechender Form in das dp-Modell übergeben. In Abbildung 5.2 wird der generelle Aufbau dieser Modelle dargestellt.

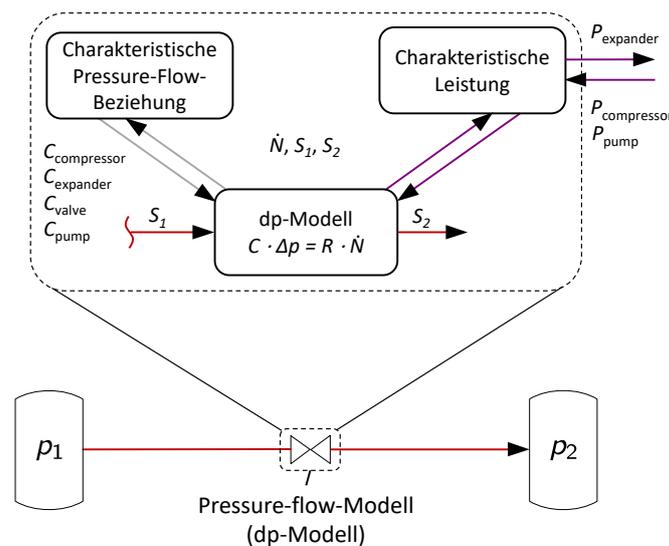


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung der Modelle zur Förderung und Transport von Fluiden in Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz nach THOMAS ET AL. (2020)

Neben dem grundlegenden dp-Modell sind noch weitere Modelle zur Berechnung der charakteristischen mechanischen Leistung P_{mech} notwendig. Dabei wird zwischen der Bestimmung der jeweils benötigten mechanischen Leistung für Pumpe P_{pump} und Verdichter $P_{compressor}$ sowie der frei werdenden mechanischen Leistung des Expanders $P_{expander}$ unterschieden. Zusätzlich wird in weiteren Modellen die jeweilige pressure-flow-Beziehung bestimmt. Diese wird in Form des Widerstandsbeiwerts C im dp-Modell berücksichtigt, welcher entweder konstant oder als Funktion definiert sein kann. Die zusätzlichen Berechnungen sind dabei meist abhängig vom thermodynamischen Zustand

des Stroms S_1 sowie vom aktuellen Stoffmengenstrom durch die Apparatur. Die frei werdende oder benötigte Leistung wirkt sich auf die spezifische Enthalpie h_{S_2} des aus dem dp-Modell austretenden Stroms aus. Das Druckniveau, auf das die Maschine das Fluid heben oder senken soll, wird durch den nächsten Druckknoten in Strömungsrichtung p_2 vorgegeben. Abhängig davon ergibt sich die Temperatur T_2 des Stroms S_2 . Um auch Druckerhöhungen darzustellen, kann der entsprechende Widerstandsbeiwert C auch negative Werte annehmen. Der Widerstandsbeiwert R bleibt für alle nachfolgenden Maschinen- oder Ventilmodelle konstant.

Ventile

Nachfolgend wird die Bestimmung des Widerstandsbeiwerts C_{valve} eines Ventils für inkompressible Medien vorgestellt. Diese Herleitung wurde bereits im Rahmen eines Vortrags von KENDER ET AL. (04.11.2019) auf einer Tagung vorgestellt.

Ausgehend von Gleichung (4.11) wird zunächst der Volumenstrom \dot{V} über das Verhältnis von Dichte ϱ und molarer Masse \bar{M} des Fluids in einen Stoffmengenstrom \dot{N} umgerechnet. Damit ergibt sich nach Multiplikation der rechten Seite mit dem Term $\sqrt{\frac{\Delta p}{\Delta p}}$ Gleichung (5.1) für den Stoffmengenstrom \dot{N} :

$$\dot{N} = K_V \cdot \frac{\varrho}{\bar{M}} \cdot \sqrt{\frac{1000 \cdot \Delta p}{\varrho}} \cdot \sqrt{\frac{\Delta p}{\Delta p}}. \quad (5.1)$$

Um nun auf die Form von Gleichung (4.5) zu kommen, werden in Gleichung (5.1) beide Seiten mit dem Widerstandsbeiwert R erweitert:

$$\dot{N} \cdot R = R \cdot K_V \cdot \underbrace{\frac{\varrho}{\bar{M}} \cdot \sqrt{\frac{1000}{\varrho \cdot \Delta p}}}_{C_{\text{valve}}} \cdot \Delta p. \quad (5.2)$$

Der Widerstandsbeiwert C_{valve} ergibt sich nach Gleichung (5.3) zu

$$C_{\text{valve}} = \frac{R \cdot K_V \cdot \sqrt{1000 \cdot \varrho}}{\bar{M} \cdot \sqrt{\Delta p}}. \quad (5.3)$$

Um zu verhindern, dass im Wurzelterm des Nenners negative Werte für den Druckverlust angenommen werden und um eine Division durch null zu vermeiden, definiert Gleichung (5.4) einen regularisierten Widerstandsbeiwert $C_{\text{valve,reg}}$ wie folgt:

$$C_{\text{valve,reg}} = \frac{R \cdot K_V \cdot \sqrt{1000 \cdot \varrho}}{\bar{M} \cdot \sqrt{|\Delta p| + B_1 \cdot e^{(-B_2 \cdot |\Delta p|)}}} \quad \text{mit} \quad K_V \text{ in } \frac{\text{m}^3}{\text{h}} \quad (5.4)$$

$$\varrho \text{ in } \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$$

$$\Delta p \text{ in bar}$$

$$\bar{M} \text{ in } \frac{\text{kg}}{\text{mol}}.$$

Dabei wird durch B_1 eine untere Schranke für den Wert des Druckverlusts Δp angegeben. Die Wahl des Parameters B_2 steuert, wie schnell der additive Term im Bereich von $\Delta p > 0$ verschwindet. Dieser additive Term ist nicht zwingend für die Lösbarkeit des Nullströmungsfalls von Gleichung (4.5) in Kombination mit Gleichung (5.4) notwendig, wird jedoch für ein besseres Lösungsverhalten im Bereich kleiner Druckverlustwerte verwendet. Somit können auch Druckausgleichsvorgänge wie z.B. bei plötzlichen Anlagenstopps berücksichtigt werden.

Pumpen

Bei den entwickelten Pumpenmodellen wird zusätzlich die Möglichkeit betrachtet, den Gegendruck der Pumpe vorgeben zu können. Dazu muss in pressure-flow-Netzwerk nach der Pumpe ein weiteres pressure-flow-Modell geschaltet werden, welches das Fluid weiter auf den Druck des angeschlossenen Druckknotens entspannt. In Abbildung 5.3 ist eine typische Verschaltung einer Pumpe in einem pressure-flow-Netzwerk dargestellt.

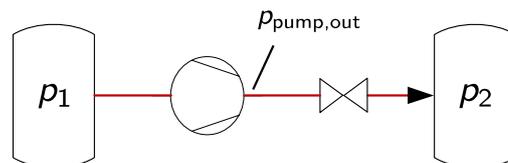


Abbildung 5.3: Verschaltung eines Pumpenmodells in einem pressure-flow-Netzwerk

Für die in Abbildung 5.3 dargestellte Strömungsrichtung gilt $p_1 < p_2$ sowie $p_{\text{pump,out}} > p_2$. In der nachfolgenden Herleitung des Widerstandsbeiwerts C_{pump} bezieht sich der Druckunterschied Δp auf die Differenz $p_1 - p_{\text{pump,out}}$.

Ausgehend von Gleichung (4.21) wird analog zur Ventilmodellierung dargestellt in Abschnitt 5.2 mittels Gleichung (5.5) der Volumenstrom \dot{V} über das Verhältnis von Dichte ϱ und molarer Masse \bar{M} des Fluids in einen Stoffmengenstrom \dot{N} umgerechnet:

$$\dot{N} = \eta_{\text{pump}} \cdot P_{\text{mech}} \cdot \frac{\varrho}{\bar{M}} \cdot \frac{1}{\Delta p}. \quad (5.5)$$

Nach Erweiterung von Gleichung (5.5) mit dem Widerstandsbeiwert R und Multiplikation der rechten Seite mit dem Term $\left(\frac{\Delta p}{\Delta p}\right)^2$ ergibt sich in Gleichung (5.6)

$$\dot{N} \cdot R = \underbrace{R \cdot \eta_{\text{pump}} \cdot P_{\text{mech}} \cdot \frac{\varrho}{\bar{M}} \cdot \frac{1}{\Delta p^2}}_{C_{\text{pump}}} \cdot \Delta p \quad (5.6)$$

die gewünschte Form der Grundgleichung des quasi-linearen pressure-flow-Zusammenhangs (siehe Gleichung (4.5)).

Der Widerstandsbeiwert C_{pump} ergibt sich nach Gleichung (5.7) zu

$$C_{\text{pump}} = \frac{R \cdot \eta_{\text{pump}} \cdot P_{\text{mech}} \cdot \varrho}{\bar{M} \cdot \Delta p^2}. \quad (5.7)$$

Um sicherzustellen, dass die Pumpe nicht gegen ein geschlossenes pressure-flow-Modell (z.B Ventil) oder einen bereits vollen Behälter fördert, werden bei der Berechnung des Widerstandsbeiwerts C_{pump} die zusätzlichen Parameter λ_{dp} und λ_{level} eingeführt. Diese werden ab einem manuell definierten Grenzwert für den Widerstandsbeiwert C des nachgeschalteten pressure-flow-Modells oder des Füllstands eines nachgeschalteten Behälters durch die Sigmoidfunktion in Gleichung (4.9) vom Wert 1 auf den Wert 0 stetig überblendet. Der regularisierte Widerstandsbeiwert $C_{\text{pump,reg}}$ ist nach Gleichung (5.8) folgendermaßen definiert:

$$C_{\text{pump,reg}} = \frac{R \cdot \eta_{\text{pump}} \cdot P_{\text{mech}} \cdot \varrho}{\bar{M} \cdot \Delta p^2} \cdot \lambda_{\text{dp}} \cdot \lambda_{\text{level}}. \quad (5.8)$$

Expander und Verdichter

Für die entwickelten quasistationären Modelle von Expander und Verdichter wird angenommen, dass die jeweiligen Widerstandsbeiwerte C_{expander} und $C_{\text{compressor}}$ konstant sind. Der Fokus bei diesen beiden Maschinenmodellen ist auf der Zustandsänderung des durchströmenden Fluids aufgrund der zu- oder abgeführten Leistung (siehe Abschnitt 4.3.1).

5.3 Modellierung der Rektifikationskolonnen

Im Folgenden wird auf die modelltechnische Umsetzung des in Abschnitt 4.3.2 vorgestellten generischen Kolonnenmodells eingegangen. Hierbei handelt es sich um das Herzstück der virtuellen ASU. Zunächst liegt der Fokus auf dem modular-hierarchischen Modellaufbau. Danach wird auf die Anwendung des Kolonnenmodells in Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz nach THOMAS ET AL. (2020) (siehe Abschnitt 4.2.2) eingegangen. Weiter werden die notwendigen Regularisierungen für die im Rahmen dieser Arbeit implementierten Siebbodenkorrelationen vorgestellt. Diese werden für die robuste Abbildung des gesamten Betriebsbereichs einer ASU, welcher für den flexiblen Betrieb relevant ist, benötigt. Der nachfolgende Abschnitt enthält Teile aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2021a), welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

In Abbildung 5.4 ist der modular-hierarchische Aufbau des generischen Kolonnenmodells dargestellt. Das komplexe Gesamtmodell einer Kolonne besteht weiter aus einzelnen sich wiederholenden Komponentenmodellen. Dabei kann es sich um Teilmodelle für Flüssigkeitsverteiler, dp-Modelle oder theoretische Trennstufen handeln. Die theoretischen Trennstufen können zusätzlich als Kondensator oder Verdampfer konfiguriert werden.

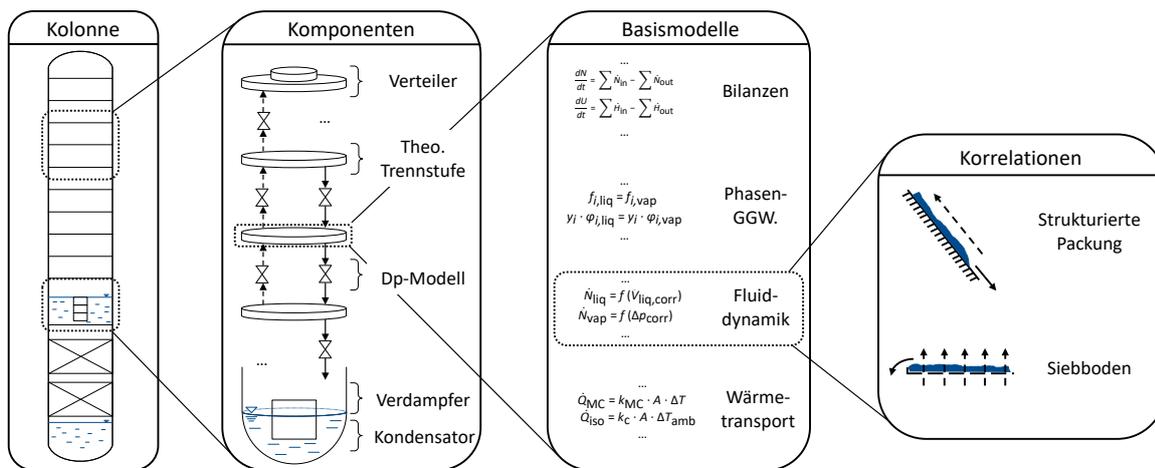


Abbildung 5.4: Schematische Darstellung des modular-hierarchischen Aufbaus des generischen Kolonnenmodells nach KENDER ET AL. (2021a)

Für die nächste Hierarchieebene sind in Abbildung 5.4 beispielhaft die Basismodelle einer theoretischen Trennstufe dargestellt. Diese Ebene beinhaltet Modelle für die Bilanzen, das Phasengleichgewicht, den Wärmetransport sowie die Fluid-dynamik. Bei Letzterem kann bei der Berechnung weiter zwischen der Verwendung von Korrelationen für strukturierte Packungen oder für Siebböden unterschieden werden. Die Implementierung des Kolonnenmodells mit Korrelationen für strukturierte Packungen ist Gegenstand der Dissertation von WUNDERLICH (2018). Durch klar definierte Schnittstellen wird im Rahmen dieser Arbeit ein zusätzliches Modul für Siebbodenkorrelationen implementiert, ohne dabei die Struktur des bestehenden Modells zu verändern.

5.3.1 Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz

Um die in Abschnitt 4.3.2 vorgestellten Siebbodenkorrelationen durch die grundlegende pressure-flow-Beziehung (siehe Gleichung (4.5)) ausdrücken zu können, müssen die Widerstandsbeiwerte $C_{\text{liq, tray}}$ und $R_{\text{vap, tray}}$ für die austretenden Gas- und Flüssigkeitsströme der einzelnen Böden entsprechend bestimmt werden.

Für die Berechnung des Widerstandsbeiwerts $R_{\text{vap, tray}}$ des austretenden Gasstroms wird in jedem Zeitschritt t die tatsächlich anliegende Druckdifferenz $\Delta p_{n-(n+1)}$ zweier benachbarter Böden n und $n+1$ mit dem Sollwert Δp_{tray} gleichgesetzt. Der Widerstandsbeiwert $C_{\text{liq, tray}}$ des austretenden Flüssigkeitsstroms resultiert aus der Gleichheitsbedingung des flüssigen Holdups h_n mit h_{tray} .

h_{tray} und Δp_{tray} werden dabei für den aktuellen thermodynamischen Zustand des Bodens n durch die Siebbodenkorrelationen berechnet. Auf diese Weise können implizit die entsprechenden Widerstandsbeiwerte $C_{\text{liq, tray}}$ (flüssiger Holdup) sowie $R_{\text{vap, tray}}$ (Druckverlust) bestimmt werden. Unter Verwendung von Gleichung (4.5) werden daraus die entsprechenden Stoffmengenströme für die austretenden Gas- bzw. Flüssigkeitsströme $\dot{N}_{\text{vap, tray}}$ und $\dot{N}_{\text{liq, tray}}$ bestimmt. Eine ausführliche Begründung, warum für den austretenden Gasstrom $R_{\text{vap, tray}}$ und den ablaufenden Flüssigkeitsstrom $C_{\text{liq, tray}}$ verwendet wird, ist in WUNDERLICH (2018) gegeben.

Dadurch wird der aktuelle thermodynamische Zustand des betrachteten Bodens n verändert. Die Stoffmenge der austretenden Ströme wird solange iterativ angepasst, bis der tatsächliche Druckgradient $\Delta p_{n-(n+1)}$ und der flüssige Holdup h_n des Bodens n mit den durch die Korrelationen vorhergesagten Werten Δp_{tray} und h_{tray} übereinstimmen. Zur Veranschaulichung ist das beschriebene Berechnungsschema in Abbildung 5.5 dargestellt.

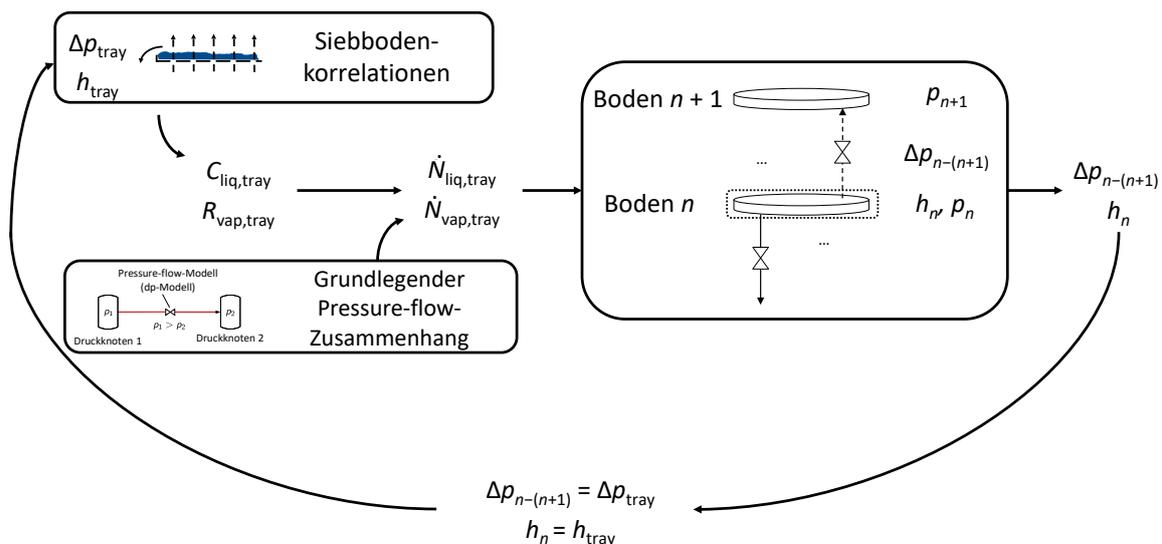


Abbildung 5.5: Berechnungsschema für die Anwendung von Siebbodenkorrelationen mit dem druckgetriebenen Ansatz nach KENDER ET AL. (2021a)

5.3.2 Regularisierung der Siebbodenkorrelationen

Weiter werden die verwendeten Regularisierungen betrachtet, die es erlauben, die in Abschnitt 4.3.2 vorgestellten Siebbodenkorrelationen über den gesamten Betriebsbereich einer ASU zu verwenden.

Druckverlust

Zunächst werden die notwendigen Regularisierungen für die Korrelationen zur Berechnung des Druckverlusts vorgestellt. Dabei werden sowohl die Berechnungen für den trockenen Druckverlust als auch für den Druckverlust aufgrund der Höhe der klaren Flüssigkeit zusätzlich zum gesamten Druckverlust des Bodens separat regularisiert.

Die Regularisierungen sind für Szenarien, die kleine Strömungswerte, Nullströmungen oder eine Umkehr der Strömung beinhalten sowie beim Auftreten oder Verschwinden von Phasen notwendig. Δp_{dry} und Δp_{tray} werden für kleine F -Faktoren F_h regularisiert und für negative F -Faktoren $F_h < 0$ extrapoliert (Strömungsumkehr). Δp_{liq} wird während des Auftretens oder Verschwindens der Flüssigphase auf einem Boden regularisiert.

Angesichts des parabelförmigen Verlaufs des trockenen Druckverlusts aus Gleichung (4.34) (siehe Abbildung 5.6 a)) muss die numerische Singularität ($\frac{d\Delta p_{\text{dry}}}{dF_h}|_{F_h=0} = 0$) für eine Nullströmung des Gases verhindert werden. Dazu wird für Gleichung (4.34) ein zusätzlicher Exponentialterm addiert. Der regularisierte trockene Druckverlust $\Delta p_{\text{dry,reg}'}$ lässt sich nach Gleichung (5.9) bestimmen:

$$\Delta p_{\text{dry,reg}'} = \frac{1}{2} \cdot \zeta \cdot F_h^2 + B_3 \cdot \frac{1}{2} \cdot \zeta \cdot F_h \cdot e^{(-B_4 \cdot F_h^2)}. \quad (5.9)$$

Die Konstante B_3 bestimmt die Steigung des Verlaufs im Nullströmungsfall $F_h = 0$. Der Wert des konstanten Parameters B_4 ist ausschlaggebend, ab welcher Gasbelastung F_h der Verlauf des regularisierten Druckverlusts $\Delta p_{\text{dry,reg}'}$ mit dem des ursprünglichen Werts in Gleichung (4.34) übereinstimmt.

Für negative Gasbelastungen wird der Verlauf des regularisierten trockenen Druckverlusts $p_{\text{dry,reg}'}$ linear extrapoliert. Die Steigung der Geraden entspricht dabei dem Wert bei $F_h = 0$, welcher durch Gleichung (5.9) vorgegeben wird. $\Delta p_{\text{dry,lin}}$ ist entsprechend Gleichung (5.10) als

$$\Delta p_{\text{dry,lin}} = B_3 \cdot \frac{1}{2} \cdot \zeta \cdot F_h \quad (5.10)$$

definiert. Der Wert für die Konstante B_3 ist dabei identisch zum Wert in Gleichung (5.9). Der gesamte regularisierte trockene Druckverlust setzt sich additiv aus den Gleichungen (5.9) und (5.10), unter Verwendung von Gleichung (4.8) zu Gleichung (5.11) zusammen.

$$\Delta p_{\text{dry,reg}} = (1 - \lambda_\epsilon) \cdot \Delta p_{\text{dry,reg}'} + \lambda_\epsilon \cdot \Delta p_{\text{dry,lin}} \quad (5.11)$$

Der Wert für λ_ε wird über die in Gleichung (5.12) dargestellte Heaviside-Funktion bestimmt:

$$\lambda_\varepsilon = \Theta(F_h). \quad (5.12)$$

In Abbildung 5.6 a) sind die originalen und regularisierten Verläufe des trockenen Druckverlusts für kleine F -Faktoren F_h bei einem konstanten Volumenstrom \dot{V}_{liq} der ablaufenden Flüssigkeit des Bodens dargestellt. In allen nachfolgenden Abbildungen sind die dargestellten Größen bezogen auf ihren Designwert normiert. Dies wird in den Bildunterschriften und Achsenbeschriftungen angegeben und mit dem hochgestellten Index N gekennzeichnet. Im Fließtext wird nicht zwischen normierten und nicht-normierten Parametern unterschieden.

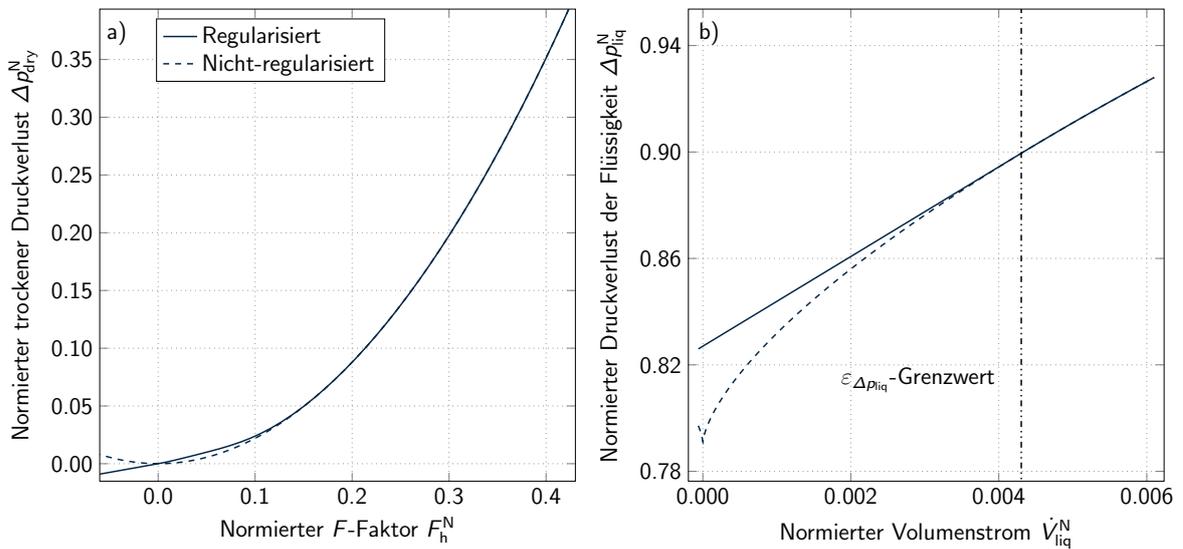


Abbildung 5.6: a) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des trockenen Druckverlusts Δp_{dry}^N über den normierten F -Faktor F_h^N b) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des Druckverlusts Δp_{liq}^N durch die Flüssigkeit über den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N

In Abbildung 5.6 b) sind die regularisierten und nicht-regularisierten Verläufe des Druckverlusts Δp_{liq} , der durch die Höhe der klaren Flüssigkeit entsteht, über den Volumenstrom \dot{V}_{liq} der vom Boden abströmenden Flüssigkeit bei einem konstanten F -Faktor F_h dargestellt.

Der grundlegende Zusammenhang für die Berechnung des Druckverlusts Δp_{liq} wird in Gleichung (4.36) beschrieben. Aus der Steigung des Verlaufs von Gleichung (4.38) resultiert die Notwendigkeit der Regularisierung bei kleinen Volumenströmen \dot{V}_{liq} der abströmenden Flüssigkeit. Mit einer Annäherung des Volumenstroms \dot{V}_{liq} gegen null ist die typische Form einer Wurzelfunktion zu erkennen. Die Ableitung des

Druckverlusts Δp_{liq} durch die Höhe der klaren Flüssigkeit zeigt daher in Gleichung (5.13) folgende Abhängigkeit vom Volumenstrom \dot{V}_{liq} :

$$\frac{d(\Delta p_{\text{liq}})}{d\dot{V}_{\text{liq}}} \sim \frac{1}{\sqrt[3]{\dot{V}_{\text{liq}}}}. \quad (5.13)$$

Die Ableitung des Druckverlusts Δp_{liq} divergiert bei einem Annähern des Volumenstroms \dot{V}_{liq} gegen null. Um dieses Verhalten zu verhindern, wird der Druckverlust Δp_{liq} durch die Flüssigkeit ab einem definierten Grenzwert $\varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}$ linearisiert. Dies wird durch die gestrichelte Linie in Abbildung 5.6 b) veranschaulicht. Für die Linearisierung wird basierend auf Gleichung (4.38) ein modifizierter Einfluss der Flüssigkeitsbelastung auf die Überlaufhöhe der Zweiphasenschicht über dem Auslaufwehr h'_{oW} in Gleichung (5.14) eingeführt:

$$h'_{\text{oW}} = \frac{C}{g^{\frac{1}{3}}} \cdot \left(\frac{1}{l_{\text{W}} \cdot \varepsilon_{\text{liq}}} \right)^{\frac{2}{3}} \cdot \left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\Delta \rho} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (5.14)$$

Unter der Verwendung der modifizierten Höhe h'_{oW} kann in Gleichung (5.15) der regularisierte Druckverlust $\Delta p_{\text{liq,reg}}$ durch die Flüssigkeit folgendermaßen modifiziert werden:

$$\Delta p_{\text{liq,reg}} = \left(h_{\text{W}} + \frac{2}{3} \cdot h'_{\text{oW}} \cdot \varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}^{-\frac{1}{3}} \cdot \dot{V}_{\text{liq}} + \frac{1}{3} \cdot h'_{\text{oW}} \cdot \varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}^{\frac{2}{3}} \right) \cdot \Delta \rho \cdot g. \quad (5.15)$$

Im Bereich $\dot{V}_{\text{liq}} \leq \varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}$ verläuft Gleichung (5.15) linear, wohingegen für $\dot{V}_{\text{liq}} > \varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}$ der Verlauf von $\Delta p_{\text{liq,reg}}$ mit Δp_{liq} übereinstimmt. Für eine möglichst allgemeine Formulierung des Grenzwerts $\varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}$ wird dieser Grenzwert in Abhängigkeit des Volumenstroms $\dot{V}_{\text{liq,des}}$ im Auslegungsfall der betrachteten Kolonne definiert. In dieser Arbeit liegt der Grenzwert bei $\varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}} = 0.01 \cdot \dot{V}_{\text{liq,des}}$.

Zusätzlich wird bei genauerer Betrachtung von Abbildung 5.6 b) offensichtlich, dass die Verläufe der (nicht-) regularisierten Druckverluste Δp_{liq} und $\Delta p_{\text{liq,reg}}$ positive Werte für den Nullströmungsfall annehmen. Das führt zu Werten $\Delta p_{\text{tray}} > 0$ für den Gesamtdruckverlust bei verschwindender Gasströmung $F_{\text{h}} = 0$. Um dies zu verhindern, wird der Verlauf des Gesamtdruckverlusts für kleine Strömungen ab einem Grenzwert von $\varepsilon_{F_{\text{h,max}}} = 0.2 \cdot F_{\text{h,des}}$, mit der Bedingung $\Delta p_{\text{tray}}(F_{\text{h}} = 0) = 0$, ebenfalls linearisiert. Gleichung (5.16) beschreibt den linearisierten Druckverlust $\Delta p_{\text{tray,lin}}$ eines Siebbodens:

$$\Delta p_{\text{tray,lin}} = \frac{\Delta p_{\text{dry,reg}}(\varepsilon_{F_{\text{h,max}}}) + \Delta p_{\text{liq,reg}}}{0.2 \cdot F_{\text{h,des}}} \cdot F_{\text{h}}. \quad (5.16)$$

Dabei entspricht $\Delta p_{\text{dry,reg}}(\varepsilon_{F_{\text{h,max}}})$ dem Wert von Gleichung (5.11) bei $\varepsilon_{F_{\text{h,max}}} = 0.2 \cdot F_{\text{h,des}}$. Oberhalb des Grenzwerts ist der regularisierte Druckverlust $\Delta p_{\text{tray,reg}'}$ des Siebbodens durch Gleichung (5.17) definiert:

$$\Delta p_{\text{tray,reg}'} = \Delta p_{\text{dry,reg}} + \Delta p_{\text{liq,reg}}. \quad (5.17)$$

Für einen knickfreien Übergang zwischen den Gleichungen (5.16) und (5.17) wird eine sigmoidale Regularisierungsfunktion (siehe Gleichungen (4.8) und (4.9)) verwendet. Der gesamte regularisierte Druckverlust $\Delta p_{\text{tray,reg}}$ für einen Siebboden ist somit nach Gleichung (5.18) folgendermaßen definiert:

$$\Delta p_{\text{tray,reg}} = (1 - \lambda_{\varepsilon_{F_h}}) \cdot \Delta p_{\text{tray,reg}'} + \lambda_{\varepsilon_{F_h}} \cdot \Delta p_{\text{tray,lin}} \quad (5.18)$$

$\lambda_{\varepsilon_{F_h}}$ wird unter Verwendung von Gleichung (4.9) mit $x_{F_h} = 0.175 \cdot F_{h,\text{des}}$ und $\varepsilon_{F_h} = 0.015 \cdot F_{h,\text{des}}$ bestimmt.

Abbildung 5.7 a) stellt den regularisierten Druckverlust $\Delta p_{\text{tray,reg}}$ eines Bodens über den F -Faktor F_h bei einem konstanten Volumenstrom \dot{V}_{liq} der abfließenden Flüssigkeit dar. Darüber hinaus ist der Regularisierungsbereich hervorgehoben. Zusätzlich präsentiert Abbildung 5.7 b) $\Delta p_{\text{tray,reg}}$ in Abhängigkeit von F_h und \dot{V}_{liq} .

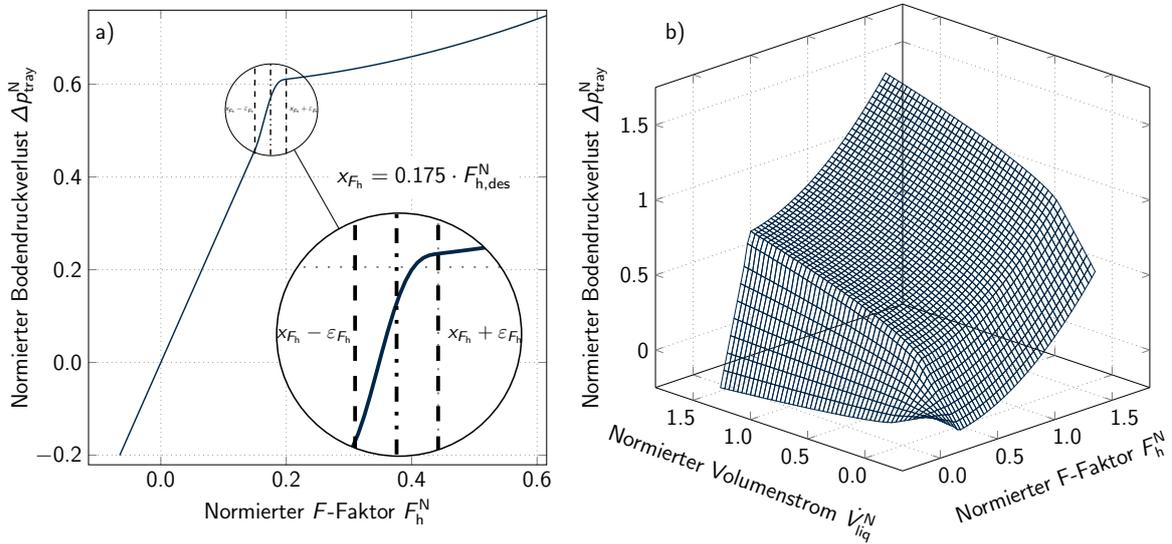


Abbildung 5.7: a) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des normierten Druckverlusts $\Delta p_{\text{tray,reg}}^N$ eines Siebbodens über den normierten F -Faktor F_h^N bei einem konstanten normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N der ablaufenden Flüssigkeit. b) Regularisierter normierter Druckverlust $\Delta p_{\text{tray,reg}}^N$ eines Siebbodens über den normierten F -Faktor F_h^N und den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N

Die Notwendigkeit für die Regularisierung der Druckverlustkorrelationen für Gasbelastungen unterhalb $\varepsilon_{F_h,\text{max}} = 0.2 \cdot F_{h,\text{des}}$ lässt sich auf den begrenzten Gültigkeitsbereich der Korrelationen aufgrund deren empirischer Natur zurückführen. Die Experimente, welche für die Erstellung und Validierung solcher Korrelationen durchgeführt werden, beschränken sich meist darauf, den gängigen Betriebsbereich möglichst gut abzudecken oder Grenzen für einen sinnvollen Zweiphasenbetrieb zu definieren. Daher werden Anfahr- oder Abschaltprozesse meist nicht berücksichtigt. [COLWELL 1981, ZUIDERWEG 1982, CHARLES C. HERRON ET AL. 1988, D. L. BENNETT ET AL. 1983]

Auch wenn die Linearisierung der Gleichung (5.18) unterhalb des gewählten Grenzwerts keine physikalisch akkurate Beschreibung der Fluidynamik liefert, ist dies eine robuste

Formulierung. Diese Stabilität ist zur Darstellung von anspruchsvollen Szenarien bei kleinen oder Nullströmungen sowie der Strömungsumkehr notwendig. Dabei wurde der Grenzwert $\varepsilon_{F_h, \max} = 0.2 \cdot F_{h, \text{des}}$ basierend auf Erfahrungswerten von Experten bei Linde gewählt. Die weiteren Parameter für die Regularisierungen B_3 , B_4 , $\varepsilon_{\Delta p_{\text{liq}}}$ sowie das Regularisierungsintervall $x_{F_h} \pm \varepsilon_{F_h}$ stellen einen Kompromiss zwischen benötigter Rechenzeit und Robustheit dar.

Flüssiger Holdup

Als Nächstes wird auf die notwendigen Regularisierungen der Korrelationen zur Bestimmung des flüssigen Holdups eines Siebbodens eingegangen. Abbildung 5.8 a) stellt h_{tray} in Abhängigkeit des Volumenstroms \dot{V}_{liq} bei einem konstanten F -Faktor F_h dar. Analog zur Berechnung des Druckverlusts Δp_{liq} durch die Höhe der klaren Flüssigkeit nimmt der flüssige Holdup des betrachteten Bodens Werte von $h_{\text{tray}} \neq 0$ für $\dot{V}_{\text{liq}} = 0$ an. Daher muss die Berechnung in diesem Bereich angepasst werden, um das Trockenlaufen eines Bodens miteinzubeziehen. Darüber hinaus divergiert der Verlauf der Ableitung des flüssigen Holdups h_{tray} für verschwindende Volumenstrom \dot{V}_{liq} . Dies wird durch die in Gleichung (5.19) dargestellte Beziehung ersichtlich.

$$\frac{dh_{\text{tray}}}{d\dot{V}_{\text{liq}}} \sim \frac{1}{\sqrt[3]{\dot{V}_{\text{liq}}}} \quad (5.19)$$

Analog zu Δp_{liq} wird der Verlauf von h_{tray} unterhalb eines Grenzwerts $\varepsilon_{\dot{V}_{\text{liq}}, \max} = 0.2 \cdot \dot{V}_{\text{liq}, \text{des}}$ linearisiert und kann durch Gleichung (5.20) ausgedrückt werden:

$$h_{\text{tray, lin}} = Y \cdot \dot{V}_{\text{liq}} \quad (5.20)$$

Y ist eine Konstante mit Werten von $Y > 0$. Für einen knickfreien Übergang zwischen den Gleichungen (4.44) und (5.20) wird eine sigmoidale Regularisierungsfunktion (siehe Gleichungen (4.8) und (4.9)) verwendet. Dadurch kann $h_{\text{tray, reg}}$ in Gleichung (5.21) folgendermaßen definiert werden:

$$h_{\text{tray, reg}} = (1 - \lambda_{\varepsilon_{\dot{V}_{\text{liq}}}}) \cdot h_{\text{tray}} + \lambda_{\varepsilon_{\dot{V}_{\text{liq}}}} \cdot h_{\text{tray, lin}} \quad (5.21)$$

Dabei wird $\lambda_{\varepsilon_{\dot{V}_{\text{liq}}}}$ unter Verwendung von Gleichung (4.9) mit $x_{\dot{V}_{\text{liq}}} = 0.1 \cdot \dot{V}_{\text{liq}, \text{des}}$ und $\varepsilon_{\dot{V}_{\text{liq}}} = 0.1 \cdot \dot{V}_{\text{liq}, \text{des}}$ berechnet. Die Linearisierung des ursprünglichen Verlaufs ist notwendig, um eine Nullstelle der Ableitung bei $\dot{V}_{\text{liq}} = 0$ zu verhindern.

In Abbildung 5.8 a) ist der Verlauf des regularisierten flüssigen Holdups $h_{\text{tray, reg}}$ über den ablaufenden Volumenstrom \dot{V}_{liq} bei einem konstanten F -Faktor F_h dargestellt. Darüber hinaus ist ein vergrößerter Ausschnitt des Regularisierungsbereichs visualisiert. Zusätzlich zeigt Abbildung 5.8 b) $h_{\text{tray, reg}}$ in Abhängigkeit von F_h und \dot{V}_{liq} .

In Analogie zur Regularisierung der Druckverlustkorrelationen wurde der Grenzwert $\varepsilon_{\dot{V}_{\text{liq}}, \max} = 0.2 \cdot \dot{V}_{\text{liq}, \text{des}}$ für die Regularisierung der Korrelationen zur Berechnung des

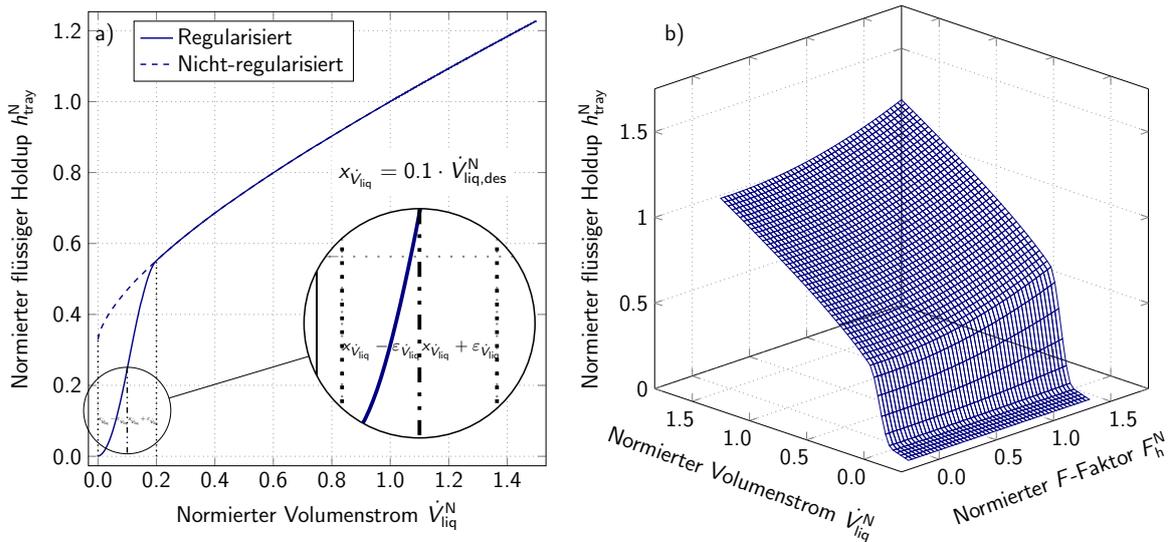


Abbildung 5.8: a) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des normierten flüssigen Holdups $h_{\text{tray,reg}}^N$ eines Siebbodens über den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N der ablaufenden Flüssigkeit bei einem konstanten F -Faktor F_h^N . b) Regularisierter normierter flüssiger Holdup $h_{\text{tray,reg}}^N$ über den normierten F -Faktor F_h^N und den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N

flüssigen Holdups basierend auf Erfahrungswerten von Experten bei Linde gewählt. Auch hier ist der Grund für eine Linearisierung die benötigte Stabilität bei der Berechnung. Das Regularisierungsintervall ist ebenfalls ein Kompromiss aus benötigter Rechenzeit und Robustheit.

5.4 Modellierung des Wärmeübertragers

Der nachfolgende Abschnitt befasst sich mit den Modellierungsdetails des in Abschnitt 4.3.3 vorgestellten generischen Wärmeübertragermodells. Zunächst wird auf den Aufbau des Modells für PFHE eingegangen, bevor die verwendeten Korrelationen für die Berechnung des Wärmeübergangs und Druckverlusts sowie deren Anwendung in Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz nach THOMAS ET AL. (2020) (siehe Abschnitt 4.2.2) eingegangen wird.

Das generische Wärmeübertragermodell nach RÖSSLER ET AL. (2022) ist in der Lage, unterschiedliche Arten von Wärmeübertragern darzustellen. Für alle betrachteten Ausführungen wird ein eindimensionaler Ansatz verfolgt. Für die unterschiedlichen Topologien sind im Modell entsprechende Methoden für die Berechnung der Wärmeübergangskoeffizienten, des Druckverlusts sowie der benötigten Stoffdaten implementiert. Dadurch können Rohrbündel-, gewickelte sowie Plattenwärmeübertrager dargestellt werden.

Dabei verfolgen RÖSSLER ET AL. (2022) das Konzept der Fabrikmethode, engl.: *class factory*, welche nachfolgend erklärt wird. Es handelt sich hier um eine Funktion, die, basierend auf gewählten Eingabeparametern, Objekte einer Klasse während der Laufzeit erstellt [GAMMA ET AL. 2011]. Aus einem Repertoire an Basismodellen mit unterschiedlichen Korrelationen für den Druckverlust und Wärmeübergang sowie der benötigten Methoden für die Berechnung der Stoffdaten kann die gewünschte Wärmeübertragergeometrie konfiguriert werden. Diese komplexe programmtechnische Umsetzung ist ausschlaggebend, um ein generisches Modell für unterschiedliche Wärmeübertragertypen zu erstellen und zeigt die Notwendigkeit von modernen Simulationsinfrastrukturen wie SMI@LE (siehe Abschnitt 5.1). Für die virtuelle ASU ist die Verwendung der PFHE-Konfiguration ausreichend. Ein Beispiel für den Aufbau eines PFHE nach RÖSSLER ET AL. (2022) ist in Abbildung 5.9 dargestellt.

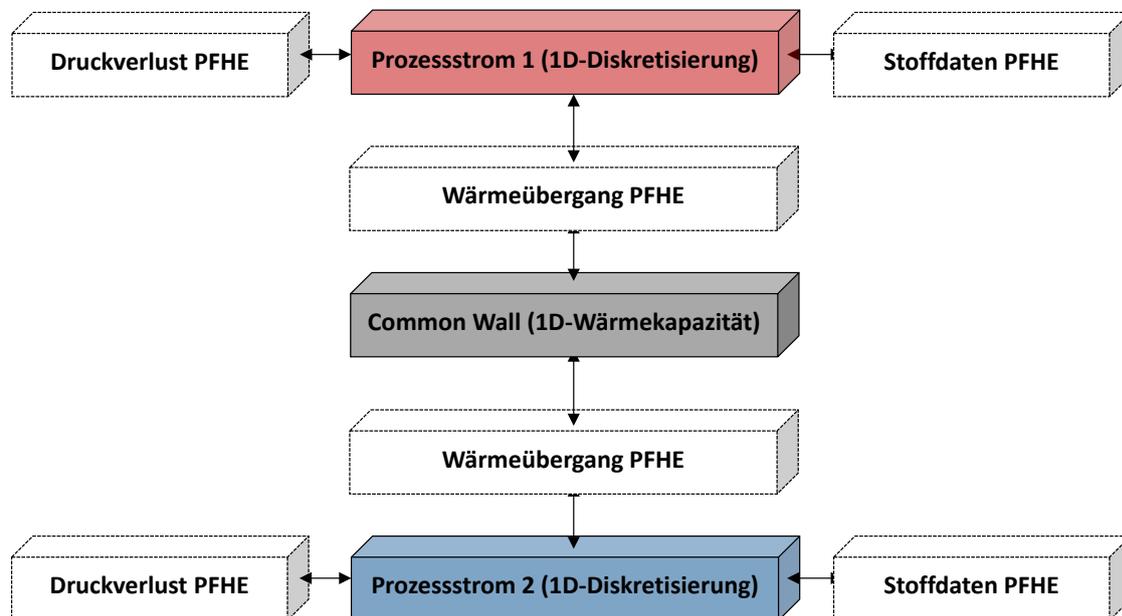


Abbildung 5.9: Schematische Darstellung einer PFHE-Konfiguration des modular-hierarchischen Wärmeübertragermodells nach RÖSSLER ET AL. (2022)

In diesem Beispiel interagieren ein warmer (rot) und ein kalter (blau) Prozessstrom mit einer Metallwärmekapazität (common wall). Die Anzahl an Prozessströmen ist theoretisch unbegrenzt und lediglich für dieses Beispiel auf zwei limitiert. Bei den Modulen zur Berechnung des Wärmeübergangs, des Druckverlusts sowie der entsprechenden Stoffdaten handelt es sich um Ausprägungen für einen PFHE, welche aus den entsprechenden Klassenfabriken zur Laufzeit generiert werden.

Für die Berechnung der benötigten Stoffdaten wird auf die entsprechende Methode (siehe Abbildung 4.4 Basisebene) zurückgegriffen, die allen Grundoperationen der virtuellen ASU zur Verfügung steht. Für die Beschreibung des Wärmeübergangs zwischen dem

Prozessstrom und der Metallwärmekapazität wird die in Gleichung (5.22) dargestellte Korrelation für den Wärmeübergangskoeffizienten α verwendet.

$$\alpha = \frac{J(Re_i, Pr_i) \cdot c_{p,i} \cdot \bar{M}_i \cdot \dot{N}_i}{Pr_i^{2/3} \cdot A_{cs}}. \quad (5.22)$$

Bei J handelt es sich um die *Colburn-Zahl* einer durchströmten Passage. Diese ist eine Funktion der *Reynolds-Zahl* Re_i und der *Prandtl-Zahl* Pr_i des Prozessstroms i . Darüber hinaus werden bei der Berechnung von α der Stoffmengenstrom \dot{N}_i , die isobare spezifische Wärmekapazität $c_{p,i}$ sowie die molare Masse \bar{M}_i des Fluids berücksichtigt. A_{cs} entspricht der Querschnittsfläche der Fluidpassage [HESSELGREAVES ET AL. 2017].

Nach Gleichung (5.23) lässt sich die effektive Fläche für den Wärmeübergang einer PFHE-Passage gemäß

$$A_{\text{eff}} = A_1 + \eta_{\text{fin}} \cdot A_2 \quad (5.23)$$

als Summe der Primärfläche A_1 und der Sekundärfläche A_2 korrigiert mit der Effizienz η_{fin} der gewählten Fins darstellen. Bei Fins handelt es sich um zusätzliche Einbauten, die dazu dienen, die effektive Wärmeübertragungsfläche A_{eff} zu erhöhen und den Wärmeübergang zu verbessern. Die Fineffizienz η_{fin} ist durch Gleichung (5.24) folgendermaßen definiert:

$$\eta_{\text{fin}} = \lambda_s \cdot \frac{\tanh(0.5 \cdot \beta)}{0.5 \cdot \beta}. \quad (5.24)$$

Die Berechnung des Parameters β ist in Gleichung (5.25) beschrieben:

$$\beta = h_{\text{fin}} \cdot \left(\frac{2 \cdot \alpha}{\lambda_s \cdot t_{\text{fin}}} \right)^{0.5}. \quad (5.25)$$

Dabei ist h_{fin} die Höhe der verwendeten Finstruktur. Der Parameter t_{fin} entspricht der Dicke des Materials, aus dem die Fins bestehen, und λ_s der Wärmeleitfähigkeit des Metalls. Weiterführende Informationen zu den verwendeten Korrelationen für den Wärmeübergang für einen PFHE können HESSELGREAVES ET AL. (2017) oder KAYS & LONDON (1997) entnommen werden.

Wie bereits in Abschnitt 4.3.3 erläutert, kann der Druckverlust in einem Wärmeübertrager vereinfacht in Form von Gleichung (4.52) berechnet werden. Für die in ASUs verwendeten PFHEs ist der Reibungsdruckverlust $\Delta p_{i,\text{fric}}$ maßgeblich und der Beschleunigungsanteil $\Delta p_{i,\text{acc}}$ kann vernachlässigt werden [NIROOMAND ET AL. 2019]. Daher kann der Druckverlust durch die in Gleichung (5.26) beschriebene Druckverlustkorrelation berechnet werden.

$$\Delta p_{i,\text{fric}} = \frac{2 \cdot F(Re_i) \cdot L \cdot \bar{M}_i^2 \cdot \dot{N}_i^2}{\rho_i \cdot d_h \cdot A_{cs}^2} \quad (5.26)$$

Der Druckverlust $\Delta p_{i,\text{fric}}$ setzt sich aus dem Reibungsfaktor F als Funktion der Reynolds-Zahl Re_i und geometrischen Eigenschaften wie der Länge L , dem hydraulischen Durchmesser d_h und der Querschnittsfläche A_{cs} der Passage zusammen. Zusätzlich fließen in die Berechnung die Stoffeigenschaften Dichte ρ_i und molare Masse \bar{M} des Prozessstrom i sowie der Stoffmengenstrom \dot{N} mit ein. Für alternative Designkorrelationen für den Druckverlust ist auf HESSELGREAVES ET AL. (2017) oder KAYS & LONDON (1997) zu verweisen.

Um eine Wärmeübertragerpassage in ein Drucknetzwerk eingliedern zu können, werden die verwendeten Korrelationen aus Gleichung (5.26) in Gleichung (5.27) folgendermaßen umformuliert:

$$\Delta p_{i,\text{fric}} = \underbrace{\frac{2 \cdot F(Re_i) \cdot L \cdot \bar{M}_i^2 \cdot \dot{N}_i}{\rho_i \cdot d_h \cdot A_{\text{cs}}^2}}_{f(\dot{N}_i, \dots)} \cdot \dot{N}_i = f(\dot{N}_i, \dots) \cdot \dot{N}_i. \quad (5.27)$$

Der Reibungsdruckverlust $\Delta p_{i,\text{fric}}$ kann als Produkt einer Funktion $f(\dot{N}_i, \dots)$, die u.a. von \dot{N} abhängig ist, und dem Stoffmengenstrom \dot{N}_i formuliert werden. Mit $R = f(\dot{N}_i, \dots)$ entspricht dies der rechten Seite der grundlegenden, quasi-linearen pressure-flow-Beziehung (siehe Gleichung (4.5)). Eine PFHE-Passage für einen Prozessstrom kann folglich als ein dp-Modell interpretiert werden. Die Implementierung ist dabei analog zu der in Abschnitt 5.2 modelltechnischen Umsetzung des Ventils oder der Pumpe.

Die vorgestellten Modelle der Ebene der Grundoperationen (siehe Abbildung 4.4) können nun zu einer beliebigen ASU-Topologie kombiniert werden. Dabei handelt es sich um die virtuelle ASU der gewünschten Anlage. Dieses Modell ist das Kernstück des DT, welcher durch die Kopplung der virtuellen ASU an eine Betriebsdatenbank oder den realen Anlagenbetrieb entsteht. Im nachfolgenden Kapitel sind drei Anwendungsfälle des DT präsentiert, die unterschiedliche Phasen des Lebenszyklus einer ASU unterstützen. Dabei werden drei verschiedene ASU-Topologien betrachtet.

6 Definition der Fallstudien, Simulationsergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die Simulationsergebnisse der Fallstudien präsentiert und diskutiert, welche durch die Anwendung des DT für unterschiedliche ASU-Topologien entstanden sind. Jeder Abschnitt entspricht einer Ausprägung des DT für einen bestimmten Anlagentyp und dessen Anwendung. Die Abschnitte sind folgendermaßen aufgebaut: als Erstes wird die betrachtete Anlagentopologie vorgestellt. Danach wird auf die spezifische Anwendung oder Aufgabe eingegangen und diese in eine Phase des Lebenszyklus entsprechend Abbildung 4.2 eingeordnet. Zusätzlich erfolgt eine Eingliederung der Studie in die Regelungspyramide nach Abbildung 3.8 sowie in die aktuelle Literatur zu ASUs, bevor die Ergebnisse der Studie präsentiert werden. Jeder Anwendungsfall entspricht dabei einer der im Vorwort genannten Veröffentlichungen, was am Beginn des Abschnitts entsprechend vermerkt wird. Die nachfolgenden Simulationsstudien sind auf einer Workstation mit einem Intel® Core™ i5-7500 CPU (bei 3.40 GHz) mit 32 GB RAM durchgeführt worden.

6.1 Erhöhung der Energieeffizienz durch Prozessintensivierung – Entwicklung von Regelungskonzepten für eine Luftzerlegungsanlage mit integrierter Argon-Abtrennungskolonnen

In diesem Abschnitt wird ein DT einer ASU mit IARC vorgestellt. Durch die Integration der ARC in die LPC wird diese in einem Abschnitt als Trennwandkolonne, engl.: *divided wall column* (DWC), ausgeführt und der Prozess der Luftzerlegung intensiviert. Gegenüber einer konventionellen Konfiguration zur Abtrennung von Ar bietet die intensivierte Topologie energetische Vorteile von $\approx 0.6\%$. Die zusätzliche Abtrennung von Ar wird bei Großanlagen mit hoher O₂-Produktionskapazität verwendet. Da der Energiebedarf einer ASU mit der Produktionskapazität skaliert, resultieren die Energieeinsparungen durch die Prozessintensivierung in einer signifikanten Reduktion der OPEX. Das komplexe ASU-Design bringt die Herausforderung mit sich, die als partielle DWC ausgeführte LPC (siehe Abbildung 6.2) zuverlässig betreiben zu können. In dieser Studie wird mit Hilfe eines DT simulativ ein Regelungskonzept für die in

Abbildung 6.1 dargestellte neuartige ASU-Topologie entwickelt und ein zuverlässiger Betrieb dieser Anlagenkonfiguration validiert. Der DT ermöglicht es, bereits vor dem Bau der Anlage zu demonstrieren, dass dieses energieeffiziente Anlagendesign nicht nur auf Basis einer thermodynamischen Auslegung möglich ist, sondern auch der Betrieb trotz der erhöhten Komplexität der Regelaufgabe durch die Prozessintensivierung regelbar bleibt.

Bezogen auf den Anlagenlebenszyklus, dargestellt in Abbildung 4.2, ist diese Studie in *Stufe 3 – Dynamisches Design* einzuordnen. Da die reale Anlage in dieser Phase noch nicht zur Verfügung steht, wird die verwendete virtuelle ASU auf Basis von Prozesssimulationen sowie Shortcut-Equipmentdesign für das Schlüssequipment (Rektifikationskolonnen, Verdampfer/Kondensatoren und Wärmeübertrager) erstellt. Dabei handelt es sich um separate stationäre Simulationen, da der DT, wie bereits in Abschnitt 4.1 beschrieben, bisher nur in der Lage ist, dynamische Simulationsmodelle in unterschiedlichen Modellgranularitäten abzubilden. Ein Ziel ist es, auch diese Funktionalitäten in die Modelle der virtuellen ASU zu integrieren. Darüber hinaus ist es nicht möglich, einen bidirektionalen Datentransfer zwischen Realanlage und dem verwendeten Anlagenmodell zu ermöglichen, was per Definition in der Literatur (siehe Abschnitt 3.4) und nach Abschnitt 4.1 ein Charakteristikum des DT ist. Jedoch soll der DT den kompletten Lebenszyklus einer ASU darstellen. Auch die Designphase, in der keine reale Anlage vorhanden ist. Die verwendeten Designmodelle können hier als Substitut für die reale Anlage gesehen werden. Insofern ist wieder ein bidirektionaler Datentransfer gegeben, da ein negativer Ausgang dieser Studie Designänderungen nach sich ziehen würde. Potentiell kann nach Bau der Anlage das Modell daran gekoppelt werden, um so den Datentransfer mit der Realanlage zu ermöglichen.

Bezüglich der in Abbildung 3.8 dargestellten Regelungspyramide ist die nachfolgende Studie auf *Level 1* (Basisregelung) einzuordnen. Bei der Literatur ist diese Studie in Abschnitt 3.3 bei den dynamischen Designstudien sowie Lastwechselanalysen einzugliedern.

Für diese Studie wird eine virtuelle ASU mit einer reduzierten Modellgranularität verwendet, um den Rechenaufwand bei ausreichender Genauigkeit auf das Nötigste zu reduzieren. Im Detail werden dabei generische pressure-flow-Modelle (linear pressure-flow-Zusammenhang) anstelle von Ventilen verwendet. Zusätzlich wird bei den Wärmeübertragern auf konstante Wärmeübergangskoeffizienten zurückgegriffen. Die Fluidodynamik der Rektifikationskolonnen wird nicht vereinfacht dargestellt, da diese maßgeblich für die dynamische Anlagenantwort ist und somit für die Evaluation der Regelungskonzepte bestmöglich aufgelöst sein sollte. Diese Studie enthält Teile aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2022a), welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

6.1.1 ASU-Topologie und Regelungskonzepte der Vergleichsstudie

Ein Fließbild der betrachteten ASU-Topologie inklusive der verwendeten Basisregelung ist in Abbildung 6.1 dargestellt. Dabei ist das Konzept der Temperaturdifferenzregelung im Folgenden auch kurz als Temperaturregelung, engl.: *temperature control* (TC), bezeichnet für die IARC eingezeichnet.

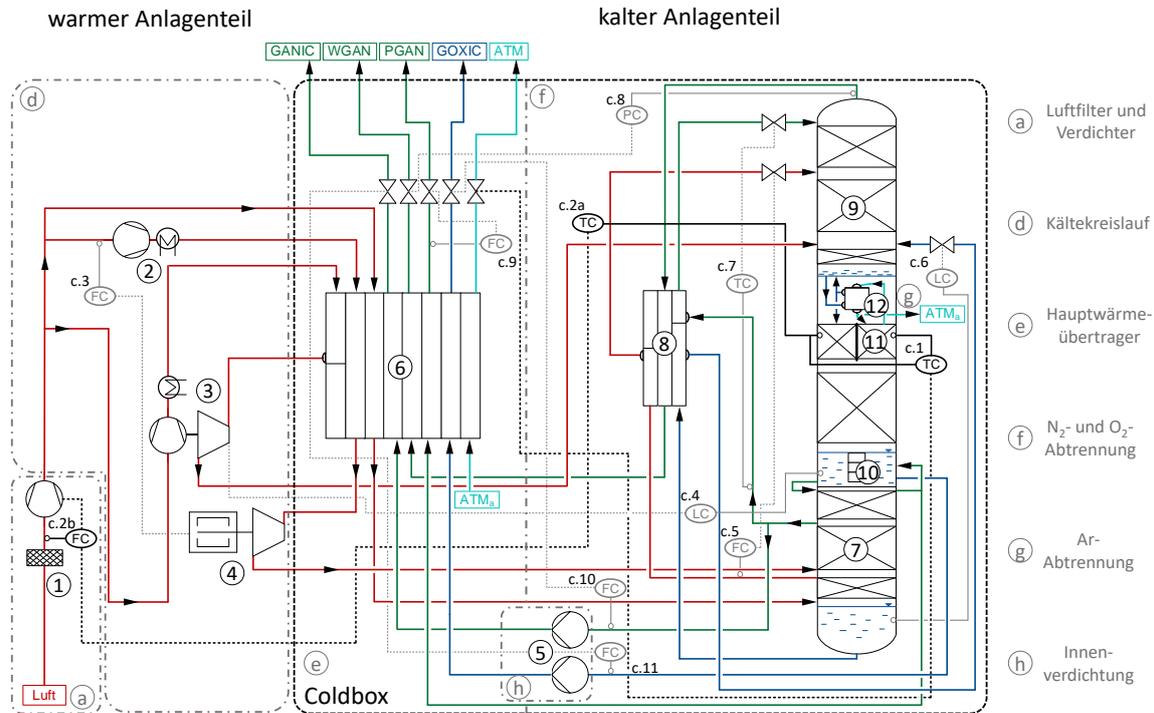


Abbildung 6.1: Darstellung des Verfahrensfließbilds einer ASU mit IARC inklusive Basisregelung entsprechend Tabelle 6.1 des in dieser Studie erstellten DT

Bei der dargestellten ASU-Topologie handelt es sich um eine O₂-Großanlage, welche ausschließlich gasförmige Produkte erzeugt. Die Hauptprodukte der Anlage sind innenverdichteter gasförmiger Sauerstoff, engl.: *gaseous oxygen internally compressed* (GOXIC), und PGAN. Der GOXIC wird dabei als LOX aus dem Sumpf der LPC ⑨, dem MC ⑩, entnommen und in einer Innenverdichtungspumpe ⑤ im Prozessblock ⑧ auf den gewünschten Produktdruck verdichtet, bevor dieser Strom im MHEX ⑥ verdampft wird. Das PGAN-Produkt wird gasförmig am Kopf der HPC ⑦ abgezogen. Ebenso wird innenverdichteter gasförmiger Stickstoff, engl.: *gaseous nitrogen internally compressed* (GANIC), in Form von LIN am Kopf der HPC abgezogen, in einer Innenverdichtungspumpe ⑤ verdichtet und im MHEX verdampft. Das Kopfprodukt der IARC ist ein Ar-reicher Strom ATM_a, der durch den MHEX (Verbindungsline nicht dargestellt) geführt und dann an die Umgebung ATM abgeblasen wird. Am Kopf der LPC wird zusätzlich gasförmiger Stickstoff, der an die Atmosphäre abgeblasen wird, engl.: *waste gaseous nitrogen* (WGAN), abgezogen. In der Praxis wird dieser Strom zur Regeneration der Adsorber für die Luftreinigung (siehe Abbildung 3.2 Prozessblock ③)

verwendet. Diese ist allerdings für die simulative Betrachtung mittels DT nicht relevant und wird daher bei der Modellierung vernachlässigt. Ebenso wird die Vorkühlung (siehe Abbildung 3.2 Prozessblock (b)) der Einfachheit halber nicht berücksichtigt. Die im Prozessblock (a) angesaugte und verdichtete Prozessluft wird als bereits gereinigt und vorgekühlt angenommen.

Weitere Abweichungen zu der in Abbildung 3.2 dargestellten ASU-Topologie sind im Kältekreislauf (Prozessblock (d)) und in der Ar-Abtrennung (Prozessblock (g)) zu finden. Die Unterschiede im Kältekreislauf resultieren aus dem in dieser Anlage verwendeten Konzept der Innenverdichtung im Prozessblock (h), welches in Abbildung 3.2 nicht vorhanden ist. Um die Verdampfung des GANIC und des GOXIC bei den entsprechenden Produktdrücken im MHEX zu gewährleisten, bedarf es im Umkehrschluss einer Verflüssigung eines Teilstroms der Prozessluft. Dazu wird etwa $\frac{1}{3}$ der Luft auf unterschiedliche Druckniveaus nachverdichtet, bevor diese in den MHEX gespeist werden. Dieser Teil der Luft wird zu $\frac{2}{3}$ in einem Booster-Luftverdichter, engl.: *booster air compressor* (BAC), (2) auf ein sehr hohes Druckniveau verdichtet und dann im MHEX komplett verflüssigt. Nach der Verflüssigung im MHEX wird dieser Strom in einer Expansionsturbine (4) auf den entsprechenden Kolonnendruck der HPC entspannt. Die restlichen $\frac{1}{3}$ des Teilstroms wird in einem Verdichter/Expander (3) vor dem Eintritt in den MHEX auf ein mittleres Druckniveau verdichtet. Das Druckniveau ist dabei abhängig von der durch die Entspannung des abgekühlten Teilluftstroms bereitgestellten Leistung. Es handelt sich hier um eine sog. MAC-BAC-Konfiguration, wobei MAC für Hauptluftverdichter, engl.: *main air compressor*, steht.

Gegenüber dem vollen Ar-System mit CAC und PAC, dargestellt in Prozessblock (g) in Abbildung 3.2, handelt es sich hier um eine Form der Ar-Abtrennung mit IARC. Diese Kolonne ist in die LPC integriert und beinhaltet nur in etwa $\frac{1}{10}$ der theoretischen Trennstufen einer typischen CAC. Das Ziel hier ist es nicht, hochreines Ar zu gewinnen, sondern einen mit Ar angereicherten Strom aus dem System zu entfernen, um so den Energiebedarf einer ASU zu minimieren. Gegenüber einer konventionellen Ar-Abtrennung bringt die Integration der ARC in die LPC energetisch noch weitere Vorteile. Der Unterschied zwischen einer konventionellen Argon-Abtrennungskolonne, engl.: *conventional argon removal column* (CARC), und einer IARC wird mittels Abbildung 6.2 genauer erklärt.

Auf der rechten Seite der Abbildung ist das CARC-Konzept zu sehen. In diesem Konzept wird, analog zu einer CAC in einem vollen Ar-System (siehe Abbildung 3.2), eine zusätzliche Kolonne mit darauf sitzendem Verdampfer/Kondensator benötigt, welche an die LPC gekoppelt ist. Durch die Teilverdampfung des unreinen flüssigen Drucksauerstoffs, engl.: *crude liquid oxygen pressurized* (CLOP), im Verdampfer/Kondensator wird das auf der Kondensatorseite aus der CARC eintretende unreine gasförmige Argon, engl.: *crude gaseous argon* (CGAR), verflüssigt und als Rücklauf für die Kolonne verwendet. Der auf der Verdampferseite eintretende Teil des CLOP-Stroms besteht hauptsächlich aus N_2 ($x_{N_2, \text{CLOP}} \approx 0.6 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$) und O_2 ($x_{O_2, \text{CLOP}} \approx 0.4 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$). Auch wenn sich der O_2 -Anteil in der Flüssigphase des Verdampfers noch weiter anreichert, bleibt dieser unter dem Wert der zu

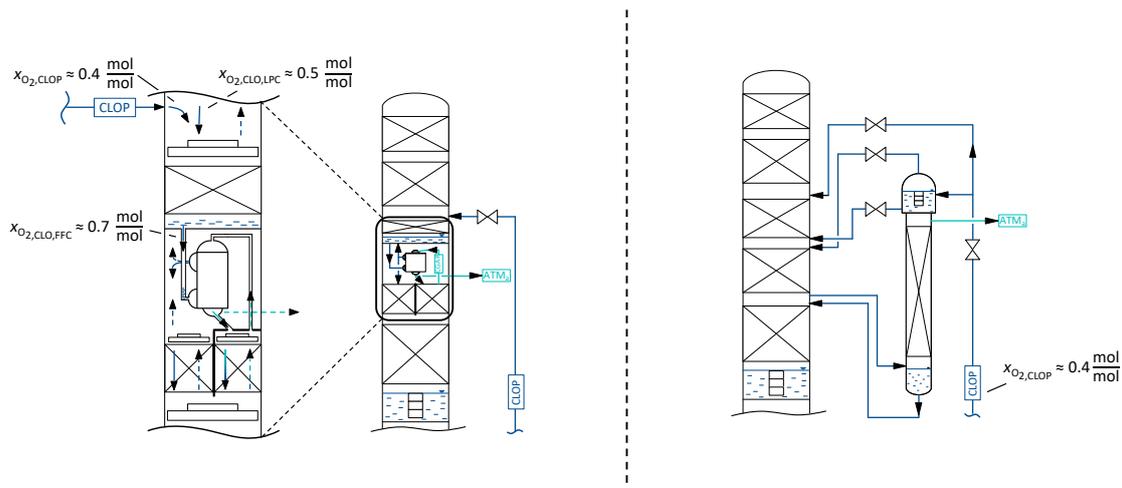


Abbildung 6.2: Vergleich der unterschiedlichen Konzepte für eine ARC. Links das IARC-Konzept und rechts das CARC-Konzept

verdampfenden Flüssigkeit in der IARC-Konfiguration von $x_{\text{O}_2,\text{CLO,FFC}} \approx 0.7 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$. Daraus resultieren typische Werte für die Temperaturdifferenz zwischen dem verdampfenden CLOP und dem kondensierenden CGAR von $\Delta T_{\text{CGAR-CLOP}} = 2 - 2.5 \text{ K}$. Der restliche Teil des CLOP-Stroms wird direkt in die LPC gespeist. Das Verhältnis des Splits wird dabei entsprechend dem minimalen Energieverbrauch der ASU gewählt. Um zusätzliches Equipment, wie z.B. eine kryogene Pumpe zu vermeiden, wird die CARC anhand eines speziellen Gerüsts erhöht angebracht, sodass der hydrostatische Druck der Sumpfflüssigkeit genutzt werden kann, um den flüssigen Rücklauf aus der CARC in die LPC zu speisen.

Auf der linken Seite in Abbildung 6.2 ist die IARC-Konfiguration dargestellt. Hier sind die ARC sowie der dazugehörige Verdampfer/Kondensator sowohl mechanisch als auch thermisch in die LPC integriert. Ersteres führt dazu, dass eine Sektion der LPC partiell als DWC ausgeführt ist. Der dazugehörige Verdampfer/Kondensator befindet sich ebenfalls in der LPC oberhalb der DWC-Sektion. Dabei handelt es sich um einen einmaligen Zwangsdurchlauf-Verdampfer/Kondensator, engl.: *forced-flow condenser/reboiler* (FFC). Die Zulaufflüssigkeit wird hier auf der Verdampferseite in einem Zulaufrohr gesammelt und durch den hydrostatischen Druck der Flüssigkeitssäule durch den Verdampfer gedrückt und partiell verdampft. Dabei wird der aufsteigende CGAR kondensiert. Nach dem Kondensationsvorgang liegt ein Zweiphasengemisch mit einem sehr geringen Dampfanteil vor. In einer Art Siphon ist es möglich, das restliche Gas von der Flüssigkeit zu trennen. Letzteres wird als Rücklauf zurück in die IARC gespeist, wohingegen das übrige Gas aus dem System entfernt und in die Atmosphäre abgelassen werden kann.

Thermische Integration bedeutet, dass auf der Verdampferseite der O_2 -reiche kolonneninterne Rücklauf anstelle des CLOP-Stroms aus dem Sumpf der HPC verwendet wird. Der CLOP-Strom wird an der dafür vorgesehenen Stelle in die LPC eingespeist, dort mit dem

flüssigen Rücklauf ($x_{\text{O}_2, \text{CLO, LPC}} \approx 0.5 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$) vermischt, wobei CLO für unreinen flüssigen Sauerstoff, engl.: *crude liquid oxygen*, steht. Der O_2 -Stoffmengenanteil wird dann in dem darunterliegenden Packungsbett weiter erhöht und mit einem O_2 -Stoffmengenanteil von $x_{\text{O}_2, \text{CLO, LPC}} \approx 0.7 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ dem FFC zugeführt. Die thermische Integration des FFC erlaubt auf der einen Seite kleinere Temperaturdifferenzen ($\Delta T_{\text{CGAR-CLO}} = 1 - 2 \text{ K}$) und auf der anderen Seite eine höhere Belastung der IARC, verglichen mit einer CARC, was zu einer effizienteren Wärmeübertragung am FFC führt und den Energieverbrauch der ASU reduziert. Wie bereits zu Beginn der Studie erwähnt, können, verglichen mit einer äquivalenten ASU mit CARC, Einsparungen im Energieverbrauch von $\approx 0.6 \%$ erzielt werden.

Die größte Herausforderung bei der Integration der ARC in die LPC ist es, einen zuverlässigen Betrieb zu gewährleisten. Es ist bekannt, dass intensivierte Prozesse mit einer oder mehreren DWCs herausfordernd für die Anlagenregelung sind, da diese durch die Integration zweier Kolonnen in eine Geometrie eine geringere Anzahl an Freiheitsgraden aufweisen. Dies führt zu einem verstärkt nichtlinearen Verhalten. Ebenfalls sind, verglichen mit konventionellen Kolonnenkonfigurationen, die Zeitkonstanten kleiner [DONAHUE ET AL. 2016]. Daher werden in dieser Studie mit Hilfe eines DT der in Abbildung 6.1 dargestellten ASU-Topologie drei Regelungskonzepte, das TC-Konzept, das LC-Konzept (Füllstandsregelung, engl.: *level control*) sowie das PDC-Konzept (Differenzdruckregelung, engl.: *pressure difference control*) vorgestellt und anhand eines Störszenarios hinsichtlich Zuverlässigkeit verglichen. Die unterschiedlichen Regelungskonzepte sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Die Auswahl der Regelungskonzepte basiert auf der bestmöglichen Ausnutzung der vorhandenen Instrumentierung einer regulären ASU (TC-, PDC-Konzept), bewährten Regelungskonzepten für ähnliche ASU-Topologien (LC-Konzept) sowie gängigen Konzepten für die Regelung von konventionellen DWC (TC-Konzept) [LING & LUYBEN 2010].

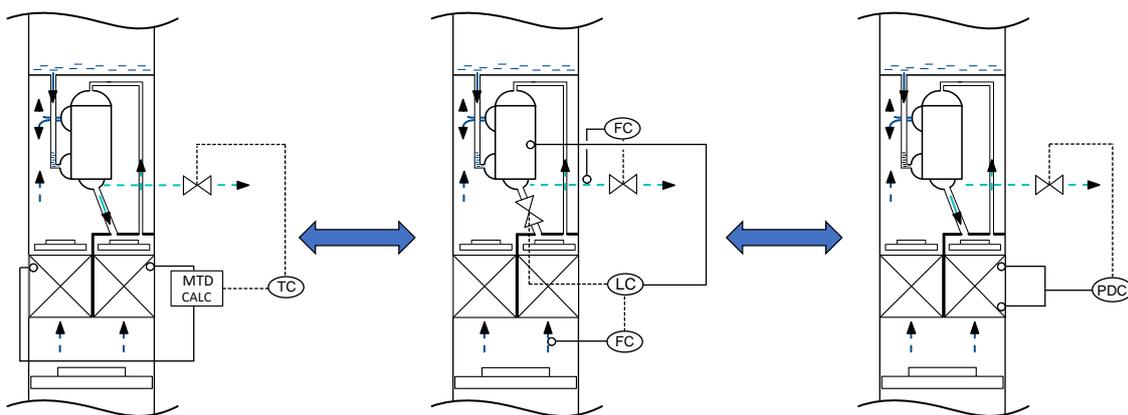


Abbildung 6.3: Vergleich der verwendeten Regelungskonzepte für die IARC. Von links nach rechts: TC- LC- und PDC-Konzept

Das Ziel der vorliegenden Regelungsaufgabe ist die zuverlässige Regelung der Belastung der IARC. Dabei zielen alle drei Konzepte darauf ab, den übertragenen

Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} des FFC entweder durch Manipulation der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} (PDC-, TC-Konzept) oder der Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} (LC-Konzept) zu beeinflussen. Dadurch wird implizit die Gasbelastung der IARC geregelt, da der übertragene Wärmestrom am Kondensator die Kondensation am Kopf der DWC-Sektion maßgeblich beeinflusst.

TC-Konzept Dieses Konzept ist in Abbildung 6.3 links dargestellt. Hier wird die Abhängigkeit der Tau- und Siedetemperaturen $T_{\text{dew,CGAR,FFC}}$ und $T_{\text{bub,CLO,FFC}}$ der Eintrittsströme von ihrer Zusammensetzung auf beiden Seiten des FFC verwendet. Die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} ist die Regelgröße. Durch die Anpassung der Menge an Ar-reichem Abgas \dot{N}_{ATM} , welches an die Umgebung abgeblasen wird, soll die Zusammensetzung des CGAR-Stroms und somit dessen Taupunkttemperatur $T_{\text{dew,CGAR,FFC}}$ beeinflusst werden. Das wiederum führt zu einer Veränderung der Zusammensetzung des Rücklaufs in die IARC, was die dort stattfindende Trennung verändert. Dadurch ändert sich die Zusammensetzung des Gasstroms, welcher in beide Abschnitte der DWC eintritt, was letztendlich einen Einfluss auf die Zusammensetzung des flüssigen Rücklaufs der LPC hat und somit die Tautemperatur $T_{\text{dew,CGAR,FFC}}$ auf der Verdampferseite des FFC manipuliert. Da bei diesem Konzept sowohl die Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} als auch der Wärmedurchgangskoeffizient k_{FFC} konstant sind, gibt es eine eindeutige Zuordnung zwischen dem übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} und der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} . Da es sich um Simulationsstudien mittels DT handelt, können die tatsächlichen Tau- und Siedetemperaturen auf beiden Seiten des FFC für die Regelung verwendet werden.

Diese Größen sind in einer Realanlage nur schwer messbar, daher kann analog eine charakteristische Temperaturdifferenz z.B. jeweils am oberen Ende der Packungsbetten auf beiden Seiten der DWC (siehe Abbildung 6.3) als Regelgröße verwendet werden. Auf der LPC-Seite ist standardmäßig in jeder ASU eine Temperaturmessstelle auf Höhe des FFC vorgesehen. Für diese Art der Regelung ist somit lediglich ein weiterer Sensor im Packungsbett der IARC anzubringen. Die Verwendung von Temperaturdifferenzen ist ein gängiges Konzept zur Regelung von DWC. Bereits LING & LUYBEN (2010) haben dies erfolgreich demonstriert. Jedoch besitzt die Anwendung dieser Art von Regelung im Kontext einer intensivierten ASU mit thermisch und mechanisch integrierter IARC einen Neuheitswert, da typische Freiheitsgrade zur Regelung von konventionellen DWC, wie z.B. der Flüssigkeits- und Gassplit, durch den FFC vorgegeben sind [WOLFF & SKOGESTAD 1995]. Die zusätzliche Integration des FFC bringt neue Herausforderungen für die Regelungsaufgabe mit sich.

LC-Konzept Dieses Konzept ist in Abbildung 6.3 in der Mitte dargestellt. Durch den Einbau eines zusätzlichen Ventils auf der Kondensatorseite ist es hier möglich, die entstehende Flüssigkeit zurückzustauen und somit die für die Übertragung der Wärme verfügbare Fläche A_{FFC} durch das kondensatorseitige Füllstandniveau zu regeln. Dadurch ist es möglich, den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} des FFC zu beeinflussen. Um eine Regelung in beide Richtungen (Erhöhung und Reduktion der IARC-Belastung) zu ermöglichen, ist eine Überdimensionierung des FFC erforderlich, da dafür ein initialer Füllstand größer null benötigt wird. Als Regelgröße wird hier der

Stoffmengenstrom \dot{N}_{IARC} des aufsteigenden Gases in die IARC verwendet, der über eine FC-LC Kaskade geregelt wird. FC steht dabei für Durchflussregelung, engl.: *flow control*. Dieses Konzept ist in Abbildung 6.3 vereinfacht dargestellt, da sowohl das zusätzliche Flüssigventil als auch die Messstrecke für die Durchflussmessung außerhalb der Kolonne angebracht werden. Außerdem ist in dieser Konfiguration ein zusätzlicher Regelkreis für die Regelung der Menge an Ar-reichem Abgas \dot{N}_{ATM} , welches an die Atmosphäre abgeblasen wird, notwendig. Im Gegensatz zum TC-Konzept kann hier die variable verfügbare Fläche A_{FFC} als ein zusätzlicher Freiheitsgrad betrachtet werden. Dadurch sind multiple Kombinationen von A_{FFC} und \dot{N}_{ATM} für die gleiche Menge an Gas \dot{N}_{IARC} , das in die IARC strömt, möglich. Um einen energieoptimalen Betrieb zu gewährleisten, muss bei der Anwendung dieses Konzepts die Menge an Ar-Abgas zur Atmosphäre entsprechend dem aktuellen Anlagenzustand manuell angepasst werden. Diese Art der Regelung hat sich bereits für die Anwendung einer rein mechanisch integrierten IARC bewährt und ist durch ein Patent der Firma *Praxair* von FALTA ET AL. (2016) beschrieben.

PDC-Konzept Dieses Konzept ist in Abbildung 6.3 rechts dargestellt. Analog zur TC-Regelung zielt dieses Regelungskonzept darauf ab, die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} durch die Veränderung der Menge an Ar-reichem Gas, welches dem System entzogen wird, zu manipulieren. Dazu wird der Zusammenhang zwischen dem Druckverlust Δp_{IARC} der IARC und deren Gasbelastung, ausgedrückt durch die Menge des aufsteigenden Gases \dot{N}_{IARC} , verwendet. Der Druckverlust der IARC ist somit in diesem Konzept die Regelgröße. Darüber hinaus wird die Druckdifferenz in der IARC unabhängig des gewählten Regelungskonzepts gemessen. Die Idee ist, die vorhandene Instrumentierung bestmöglich zu nutzen.

Die Temperatur auf der Verdampferseite des FFC wird bei allen drei Konzepten über die Luftmenge \dot{N}_{Luft} geregelt. Es handelt sich hierbei um eine Kaskadenregelung, bestehend aus einem TC und einem FC. In Abbildung 6.1 sind diese Regelkreise mit den Bezeichnungen *c2.a* (TC) und *c2.b* (FC) gekennzeichnet. Die Regelung für die IARC-Belastung hat die Bezeichnung *c.1*. Die Basisregelung des konventionellen Teils der ASU entspricht dem Stand der Technik und ist ebenfalls in Abbildung 6.1 dargestellt. Die einzelnen Regelkreise aus Abbildung 6.1 werden in Tabelle 6.1 zusammengefasst. Dabei steht PC für Druckregelung, engl.: *pressure control*.

Als Grundlage für die Einstellungen der Basisregelung wird die in SKOGESTAD (2001) vorgestellte Skogestad Internal Model Control (SIMC) Methode verwendet. Dabei werden die Sprungantworten der Regelkreise durch Modelle der ersten Ordnung mit Zeitverzögerung, engl.: *first order plus time delay* (FOPTD), approximiert. Relevante Größen für die Berechnung der Regelparameter wie die charakteristische Zeitkonstante sowie die Totzeit der Sprungantwort werden graphisch durch das Anlegen von Tangenten an die FOPTD-Modelle bestimmt. Für den Vergleich der Regelungskonzepte für die IARC sind die Einstellungen der Basisregelung identisch. Die Parameter der für die in Abbildung 6.3 benötigten Regelkreise wurden hingegen individuell bestimmt. Im weiteren Verlauf dieses Abschnitts wird das für den Vergleich betrachtete Szenario

Tabelle 6.1: Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit IARC nach Abbildung 6.1

Bezeichnung	Art	Funktionsbeschreibung
c.1	TC	Regelung der IARC-Belastung am Beispiel des TC-Konzepts
c.2a	TC	Regelung der Temperatur auf der Verdampfer-
c.2b	FC	seite des FFC durch die Luftmenge
c.3	FC	Regelung der Menge an Hochdruckluft
c.4	LC	Regelung des MC-Füllstands
c.5	FC	Regelung der Flüssigluftaufteilung
c.6	LC	Regelung des HPC-Füllstands
c.7	TC	Regelung der Temperatur der HPC
c.8	PC	Regelung des LPC-Kopfdrucks
c.9	FC	Regelung der Menge an PGAN
c.10	FC	Regelung der Menge an GANIC
c.11	FC	Regelung der Menge an GOXIC

erklärt und anhand ausgewählter Größen die Evaluation der Regelungskonzepte für die IARC präsentiert.

6.1.2 Ergebnisse und Evaluation des Vergleichs der Regelungskonzepte für den Betrieb der IARC

Für den Vergleich der in Abbildung 6.3 dargestellten Regelungskonzepte hinsichtlich des zuverlässigen Betriebs einer IARC wird ein Betriebsstörungsszenario verwendet. Dabei wird die Menge an PGAN-Produkt \dot{N}_{PGAN} , ausgehend von einem Initialzustand (100 %), innerhalb von 360 s um etwa die Hälfte ($51.8\% \approx 50\%$) reduziert. Folglich wird eine Lastwechselrate für das PGAN-Produkt von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ verwendet. Der Ausgangszustand wird durch eine notwendige Initialisierungsstrategie (Simulation eines Anfahrvorgangs aus dem Warmen analog zu KLEIN ET AL. (2020)) erreicht. Dabei handelt es sich um den energieoptimalen Auslegungsfall. In Abbildung 6.4 ist das Konzentrationsprofil der DWC für diesen Betriebspunkt in einem Dreiecksdiagramm dargestellt.

Die Ecken des Dreiecksdiagramms repräsentieren dabei die Reinstoffe N_2 , Ar und O_2 . Am Sumpf der LPC reichert sich der Schwertsieder O_2 an, wohingegen in Richtung LPC Kopf N_2 angereichert wird. Der Mittelsieder Ar akkumuliert im unteren Bereich der LPC unterhalb der DWC-Sektion. Weiter ist zu sehen, dass die Profile der IARC und der LPC am DWC-Split zusammentreffen. In der IARC ist eine annähernd binäre Trennung von Ar und O_2 zu erkennen, da lediglich Spuren von N_2 unterhalb der DWC zu finden sind. Innerhalb der IARC wird das Ar zum Kopf hin angereichert, bevor dieses zum Teil an die Atmosphäre abgeblasen wird. Als Nächstes wird in Abbildung 6.5 der Einfluss des Betriebsstörungsszenarios auf die intensivierte LPC skizziert.

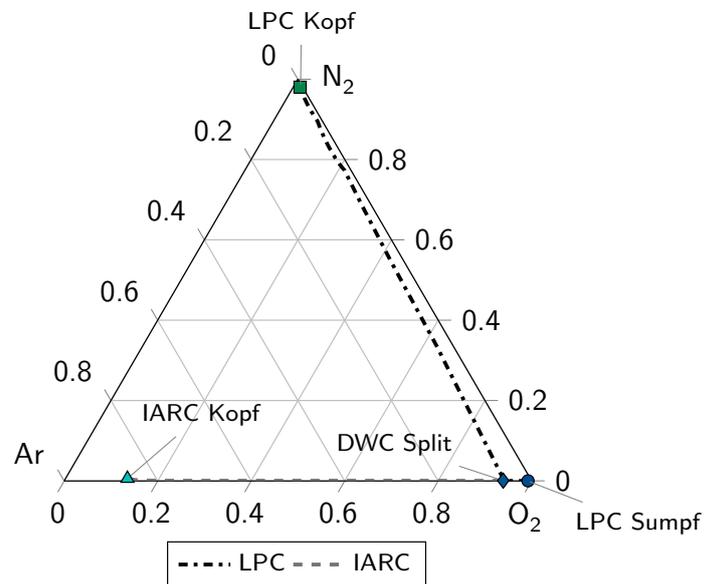


Abbildung 6.4: Konzentrationsprofil der Gasphase innerhalb der LPC und IARC (DWC) dargestellt als Dreiecksdiagramm

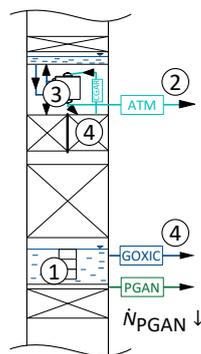


Abbildung 6.5: Einfluss der Reduktion der PGAN-Produktmenge auf die intensivierte LPC mit DWC-Abschnitt

Eine Veränderung des PGAN-Produkts hat direkte Auswirkungen auf den Anlagenzustand, da der übertragene Wärmestrom \dot{Q}_{MC} des MC ① beeinflusst wird. Dies ist ausschlaggebend für eine Veränderung der Fluidodynamik der LPC und der IARC. Um einen energieeffizienten Anlagenbetrieb aufrechtzuerhalten, wird der Ar-reiche Stoffmengenstrom \dot{N}_{ATM} ②, der an die Umgebung abgeblasen wird, an die neuen Anlagenbedingungen angepasst, um dadurch den übertragenen Wärmestrom des FFC \dot{Q}_{FFC} und die IARC-Belastung anzupassen. Abhängig vom angewendeten Regelungskonzept ③ sind entweder Änderungen der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} (TC-Konzept), der Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} (LC-Konzept) oder des Druckverlusts der IARC Δp_{IARC} (PDC-Konzept) erforderlich. Der stationäre Endzustand ist ein neuer Betriebspunkt mit angepasster IARC-Belastung. Darüber hinaus wird die Reinheit des O_2 -Produkts $x_{O_2,GOXIC}$ ④ während dieses Vorgangs überwacht, um eine mögliche Verletzung der Produktreinheit zu erkennen und zu verhindern. Die schnelle Reduktion des PGAN-Produkts ist dabei repräsentativ für ein Betriebsstörungsszenario, da dies zu einer Auslenkung des gesamten Anlagenverhaltens führt.

Für die Analyse der PGAN-Reduktion wird ein Zeitraum von 12 000 s betrachtet. Zum Zeitpunkt $t = 12\,000$ s haben noch nicht alle relevanten Parameter ihre stationären Endwerte erreicht. Dieser Zeitraum reicht dennoch aus, um die Antwort der einzelnen Regelungskonzepte auf die Störung des Anlagenbetriebs zu analysieren.

In den ersten 50 s wird ein stationärer Betrieb der Anlage am initialen Betriebspunkt simuliert. Anschließend wird zwischen 50 s und 410 s der PGAN-Stoffmengenstrom mit einer Rate von 8 %/min reduziert. Die zusätzlichen relevanten Sollwertänderungen werden ebenfalls in diesem Zeitraum linear durchgeführt. Die benötigten Sollwerte der zu vergleichenden Regelungskonzepte aus Abbildung 6.3 für einen energieoptimalen Betrieb der IARC in einem PGAN-Teillastbetrieb sind in zusätzlichen stationären Simulationen optimiert worden. Das hier dargestellte Szenario der PGAN-Reduktion ist v.a. im Bezug auf die Lastwechselrate anspruchsvoll, da es die aktuellen Anforderungen an die Lastreduktion einer ASU weit übertrifft. Daher kann es als Benchmark für einen zuverlässigen Anlagenbetrieb dieser ASU-Topologie verwendet werden. Abhängig vom gewählten Regelungskonzept ist die Anzahl an algebraischen und Differentialgleichungen der jeweiligen virtuellen ASU sowie die benötigte CPU-Zeit für die Simulation der PGAN-Reduktion lediglich minimal unterschiedlich. Daher ist die Betrachtung dieser Größen für das TC-Konzept repräsentativ. Das Gleichungssystem beinhaltet dabei 25620 algebraische und 891 Differentialgleichungen. Die Simulation des Störszenarios benötigt 15 min 33 s CPU-Zeit.

Im Folgenden werden die Aspekte ①-④, dargestellt in Abbildung 6.5, analysiert und das Verhalten der drei Regelungskonzepte verglichen.

① – Einfluss der PGAN-Reduktion auf die Fluidodynamik der LPC

Um die Auswirkungen der PGAN-Reduktion auf die LPC-Fluidodynamik und das Verhalten der IARC zu analysieren, werden die zeitlichen Verläufe der folgenden

Größen in Abbildung 6.6 dargestellt. In den linken Diagrammen sind der PGAN-Stoffmengenstrom \dot{N}_{PGAN} (oben) sowie der übertragene Wärmestrom \dot{Q}_{MC} des MC (unten) über die Zeit abgebildet. Auf der rechten Seite sind die Verläufe des aufsteigenden Gasstroms $\dot{N}_{\text{vap,LPC}}$ aus dem MC in die LPC (oben), welcher repräsentativ für die Gasbelastung des LPC-Packungsbetts unterhalb der DWC-Sektion ist, aufgetragen. Weiter sind die Verläufe des Stoffmengenstroms $\dot{N}_{\text{CLO,FFC}}$ der Flüssigkeit zum FFC (unten), der die Flüssigkeitsbelastung des LPC-Packungsbetts direkt oberhalb des FFC repräsentiert, abgebildet. Die Start- und Endzeitpunkte der PGAN-Reduktion sind in allen folgenden Abbildungen durch gestrichelte vertikale Linien gekennzeichnet. Darüber hinaus sind alle betrachteten Parameter mit Ausnahme der Stoffmengenanteile auf ihren Wert am initialen Betriebspunkt normiert. Dies wird nur in den Bildunterschriften angegeben und ist in den Achsenbeschriftungen mit dem hochgestellten Index N gekennzeichnet. Im Fließtext wird nicht zwischen normierten und nicht-normierten Parametern unterschieden.

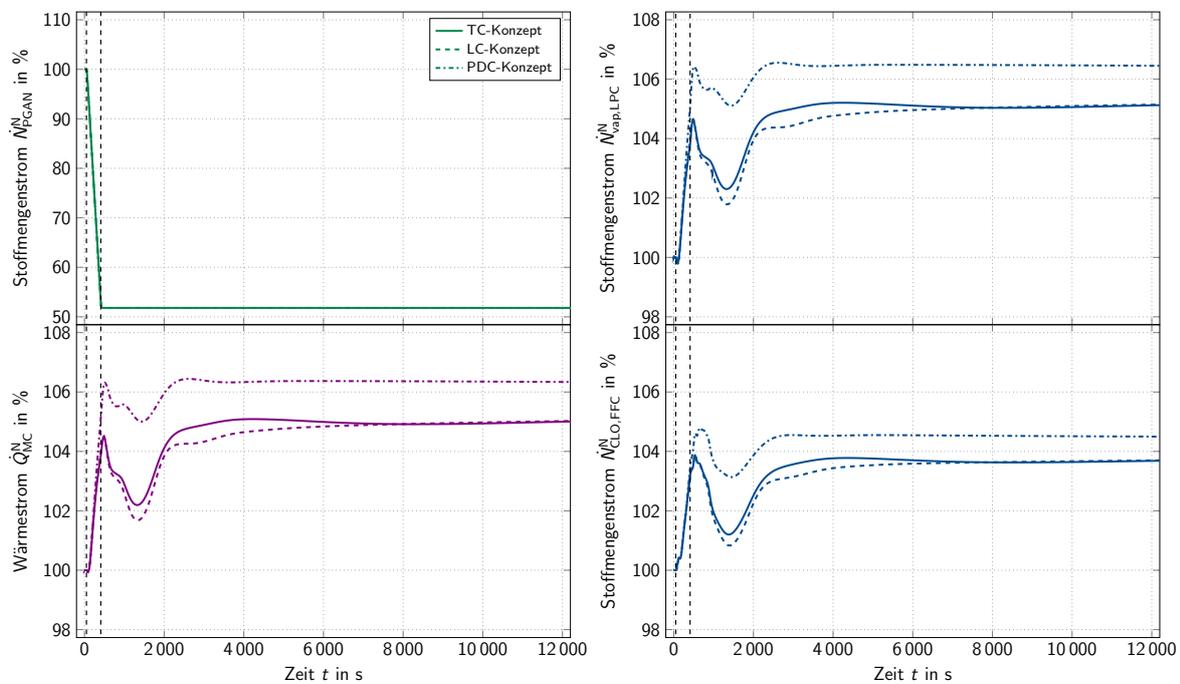


Abbildung 6.6: Zeitliche Verläufe des normierten PGAN-Stoffmengenstroms (links oben), des normierten übertragene Wärmestroms am MC (links unten), des normierten LPC-internen Gasstroms (rechts oben) sowie des normierten LPC-internen Flüssigstroms zum FFC (rechts unten) über einen Zeitraum von 12000 s

Die in Abbildung 6.6 dargestellten Größen zeigen im Allgemeinen ähnliche zeitliche Verläufe für alle drei Regelungskonzepte. Auffällig ist jedoch, dass sich der Endzustand der Anlage bei der Anwendung des PDC-Konzepts von den anderen beiden Konzepten unterscheidet. Dies ist an den höheren Endwerten der Verläufe des übertragene Wärmestroms \dot{Q}_{MC} des MC, des LPC-internen Gasstroms $\dot{N}_{\text{vap,LPC}}$ sowie des CLO-Stoffmengenstroms $\dot{N}_{\text{CLO,FFC}}$ zu erkennen.

Sowohl der kolonneninterne Gasstrom $\dot{N}_{\text{vap,LPC}}$ als auch der Stoffmengenstrom $\dot{N}_{\text{CLO,FFC}}$ zum FFC werden durch den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{MC} des MC bestimmt. Analog zum FFC ist der übertragene Wärmestrom des MC ein Produkt aus der zur Verfügung stehenden Wärmeübertragungsfläche A_{MC} , dem Wärmedurchgangskoeffizient k_{MC} sowie der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{MC} . Da im Rahmen dieser Studie die ersten beiden Größen konstant sind, ist die Temperaturdifferenz ausschlaggebend für den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{MC} am MC.

Eine Reduktion des PGAN-Produkts \dot{N}_{PGAN} führt zu einem Anstieg des Drucks $p_{\text{cond,MC}}$ auf der Kondensatorseite des MC. Dies wird durch eine Erhöhung des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} als Konsequenz einer Vergrößerung der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{MC} resultierend durch die PGAN-Reduktion hervorgerufen. Im PGAN-Produkt wird dabei die erlaubte O_2 -Verunreinigung $y_{\text{O}_2,\text{PGAN}}$ durch die Basisregelung (siehe Tabelle 6.1 c.7) konstant gehalten.

Zu den Einflüssen auf die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{MC} zählen auf der Verdampferseite des MC der Druck und die Zusammensetzung der Flüssigkeit. Der Druck ist hauptsächlich abhängig vom fluiddynamischen Zustand der LPC. Der Kopfdruck $p_{\text{top,LPC}}$ der LPC wird dabei durch die Basisregelung (siehe Tabelle 6.1 c.8) konstant gehalten. Die Zusammensetzung der O_2 -reichen Flüssigkeit $x_{\text{O}_2,\text{LOX,MC}}$ auf der Verdampferseite des MC unterliegt, wie in Abbildung 6.10 rechts oben zu sehen ist, ebenfalls keinen großen zeitlichen Änderungen. Dies ist auf die Anpassung des eintretenden Luftstroms \dot{N}_{Luft} zurückzuführen, der aufgrund der TC auf der Verdampferseite des FFC (siehe Tabelle 6.1 c.2a und c.2b) angepasst wird.

Der zeitliche Verlauf des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} am MC kann als Erklärung für die allgemeine Tendenz der relevanten Anlagenantworten für die jeweiligen Regelungskonzepte verwendet werden, da dieser sowohl auf die Fluiddynamik der HPC als auch die der LPC Einfluss nimmt. Dadurch kann dieser Verlauf als Anhaltspunkt für den Zustand der gesamten ASU verwendet werden. Die drei Regelungskonzepte zeigen während der PGAN-Reduktion unterschiedlich starke Auswirkungen auf den Anlagenzustand, was an den verschiedenen starken Ausprägungen der lokalen Minima der Verläufe des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} (siehe Abbildung 6.6 rechts unten) zu erkennen ist.

Nach einem simulierten Zeitraum von $t = 8000$ s stellt sich für alle drei Regelungskonzepte ein annähernd konstanter Verlauf des Wärmestroms \dot{Q}_{MC} und somit eine stationäre Fluiddynamik ein. Im Vergleich dazu wird bei der Anwendung des PDC-Konzepts der neue stationäre Anlagenzustand bereits nach $t \approx 4000$ s erreicht, wohingegen dieser sich für die beiden anderen Konzepte erst etwa nach $t \approx 8000$ s einstellt.

Es ist zu erkennen, dass sich bei der Anwendung des PDC-Konzepts ein abweichender stationärer Endzustand einstellt, obwohl für alle drei Konzepte die identische Referenzsimulation zur Bestimmung der Sollwerte für den PGAN-Unterlastfall verwendet wurde. Dies macht sich auch in den weiteren zeitlichen Verläufen der dargestellten Größen bemerkbar, die sich bis auf den des Druckverlusts Δp_{IARC} der IARC (siehe Abbildung 6.9 oben) in ihrem Endwert unterscheiden.

Zuletzt werden in Abbildung 6.6 die zeitlichen Verläufe des kolonneninternen Flüssigkeitsstroms $\dot{N}_{\text{CLO,FFC}}$, welcher aus der LPC in den FFC gespeist wird, beschrieben. Diese sind im Diagramm rechts unten dargestellt. Die zeitlichen Verläufe des CLO-Stoffmengenstroms folgen denen des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} und des LPC-internen Gasstroms $\dot{N}_{\text{vap,LPC}}$ mit einem zeitlichen Versatz von $\Delta t \approx 60$ s. Dieser ist ein Resultat der Menge an Flüssigkeit, die aus dem Sumpf der HPC während der PGAN-Reduktion aktiv in die LPC verschoben wird. Diese Maßnahme dient dazu, die fluiddynamischen Verhältnisse der LPC während der Lastverschiebung annähernd konstant zu halten. Dieses Vorgehen wird in Abschnitt 6.2.2 genauer beschrieben.

Die in Abbildung 6.6 dargestellten zeitlichen Verläufe verdeutlichen, dass das gewählte Szenario für den Vergleich und die Bewertung der Regelungskonzepte gut geeignet ist. Durch die schnelle PGAN-Reduktion wird die Belastung der LPC und der IARC deutlich beeinflusst. Im folgenden Abschnitt werden die notwendigen Anpassungen des an die Atmosphäre abgeblasen Ar-reichen Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} sowie deren Einfluss auf den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} am FFC betrachtet.

② – Anpassung des FFC-Wärmestroms durch den Ar-Abgasstrom

Der neue Zustand der LPC erfordert eine Anpassung des an die Atmosphäre abgeblasen Ar-reichen Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} und somit der IARC-Belastung, um auch weiterhin einen energieoptimalen Betrieb der ASU zu gewährleisten. Daher sind in Abbildung 6.7 die Verläufe des ATM-Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} , der an die Atmosphäre abgeblasen wird, im oberen und die des übertragenen Wärmestroms des FFC \dot{Q}_{FFC} im unteren Diagramm dargestellt.

Wie in Abbildung 6.3 in der Mitte zu erkennen ist, wird für das LC-Konzept ein zusätzlicher Regelkreis (FC) benötigt, der es ermöglicht, den Stoffmengenstrom \dot{N}_{ATM} des ATM-Stroms anzupassen. Daher wird bei diesem Konzept während der PGAN-Reduktion der Sollwert des Ar-reichen Stoffmengenstroms, welcher an die Umgebung abgeblasen wird, linear auf seinen Unterlastwert erhöht. Dies ist in dem vergrößerten Ausschnitt in Abbildung 6.7 zu erkennen. Da der verwendete FC eine sehr kleine Nachtstellzeit T_N aufweist, reagiert dieser sehr schnell auf die Sollwertänderung. Dies führt dazu, dass die zeitlichen Verläufe des Ist- und Sollwerts hier übereinander liegen. Bei den beiden anderen Konzepten sind die zeitlichen Verläufe des ATM-Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} ein Resultat der Sollwertänderungen der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} (TC-Konzept) oder des Kolonnendruckverlusts Δp_{IARC} (PDC-Konzept). Die Verläufe beider Konzepte verhalten sich dabei ähnlich. Beim PDC-Konzept ist jedoch die absolute Menge des Ar-Abgasstroms \dot{N}_{ATM} höher sowie die Ausprägung der Amplituden der lokalen Maxima verstärkt.

Obwohl beim PDC-Konzept nach $t \approx 4000$ s Simulationszeit minimale Änderungen im zeitlichen Verlauf des Ar-reichen Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} zu erkennen sind, bleibt der übertragene Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} des FFC annähernd konstant. Dies lässt darauf schließen, dass die weitere Anpassung des ATM-Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} , welche zum Erreichen

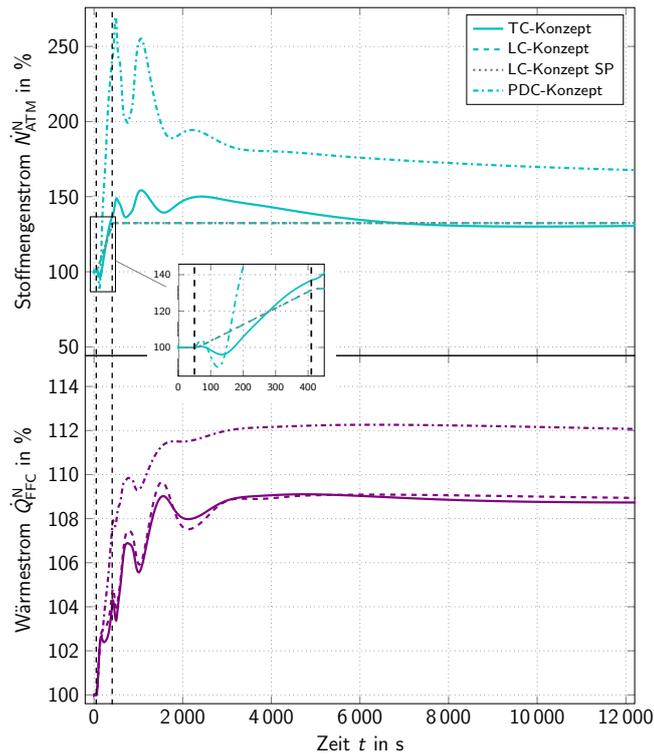


Abbildung 6.7: Zeitliche Verläufe des normierten Ar-reichen Stoffmengenstroms, der an die Umgebung abgeblasen wird (oben) und des übertragenen Wärmestroms des FFC (unten) über einen Zeitraum von 12000 s

des neuen Sollwerts des IARC-Druckverlusts notwendig ist, trotz bereits stabiler IARC-Fluiddynamik durch anhaltende Konzentrationsverschiebungen hervorgerufen wird (siehe Abbildung 6.10 rechts). Dadurch können ebenfalls auftretende Veränderungen von \dot{N}_{ATM} und \dot{Q}_{FFC} nach $t \approx 8000$ s simulierter Zeit bei Anwendung des TC-Konzepts erklärt werden. Das Ausmaß der anfänglichen Konzentrationsverschiebungen des TC-Konzepts und LC-Konzepts (siehe Abbildung 6.10 rechts) ist eine Folge des jeweiligen anfänglichen Überschwingens des an die Umgebung abgeblasenen Ar-reichen Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} (siehe Abbildung 6.7 oben).

Wie bereits erwähnt, wird bei der Anwendung des LC-Konzepts der Sollwert der Menge an Ar-reichen Abgas \dot{N}_{ATM} manuell erhöht. Daher ist bei diesem Konzept kein anfängliches Überschwingen zu erkennen, was die initiale Konzentrationsverschiebung minimiert und somit zu einem schnelleren Erreichen der gewünschten Konzentrationen führt (siehe Abbildung 6.10 rechts). Der finale Wert der aktiven Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} wird nach $t \approx 30000$ s erreicht (siehe Abbildung 6.9 vergrößerter Ausschnitt).

Im Allgemeinen ist bei den hier dargestellten zeitlichen Verläufen zu erkennen, dass die PGAN-Reduktion einen höheren Stoffmengenstrom \dot{N}_{ATM} an Ar-reichem Abgas erfordert. Daher ist ein höherer übertragener Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} am FFC zu beobachten, welcher aus einem erhöhten übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{MC} am MC und der dadurch erhöhten Gasbelastung der LPC (siehe Abbildung 6.6 links unten) resultiert. Im nächsten

Abschnitt werden die zeitlichen Verläufe der Regelgrößen der jeweiligen Konzepte verglichen und diskutiert.

③ – Regeleingriffe der unterschiedlichen Regelungskonzepte

In Abbildung 6.8 werden die zeitlichen Verläufe der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} im oberen Diagramm sowie die der Tau- und Siedetemperaturen $T_{\text{dew,CGAR}}$ und $T_{\text{bub,CLO}}$ auf beiden Seiten des FFC im unteren Diagramm dargestellt. Diese Darstellung der Verläufe wird verwendet, um zu zeigen, dass bei allen drei Regelungskonzepten die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} (in-) direkt angepasst wird, um den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} am FFC zu beeinflussen.

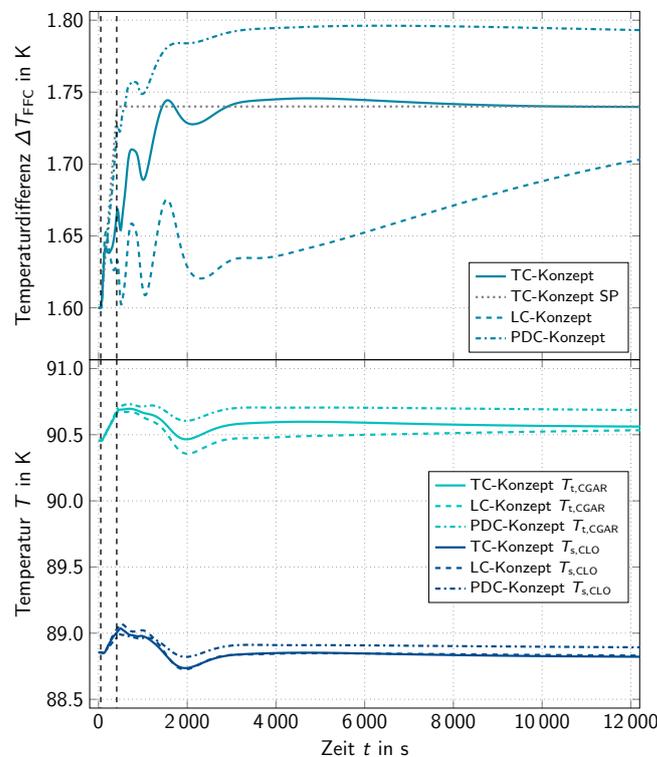


Abbildung 6.8: Zeitliche Verläufe der treibenden Temperaturdifferenz (oben) und der Tau- sowie Siedetemperaturen des CGAR- und CLO-Stroms (unten) über einen Zeitraum von 12 000 s

Auch wenn bei allen drei Regelungskonzepten die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} während der PGAN-Reduktion verändert wird, wird dieser Parameter lediglich vom TC-Konzept als Regelgröße verwendet. Analog zu den bisher gezeigten zeitlichen Verläufen werden auch bei der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} bei der Anwendung des PDC-Konzepts nach $t \approx 4000$ s und beim TC-Konzept nach $t \approx 8000$ s annähernd konstante Verläufe erreicht. Beim TC-Konzept und PDC-Konzept ist die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} auch der einzige zu variierende Parameter, um den jeweiligen übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} am FFC zu beeinflussen.

Die in Abbildung 6.8 im unteren Diagramm dargestellten zeitlichen Verläufe verdeutlichen, dass durch die Veränderung des ATM-Stoffmengenstroms die Temperaturen auf beiden Seiten des FFC beeinflusst werden. Dies ist der Grund dafür, dass die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} für das TC-Konzept als Regelgröße verwendet wird.

Beim LC-Konzept ist zu sehen, dass der zeitliche Verlauf der treibenden Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} auch nach einem Simulationszeitraum von 8000 s noch größere Änderungen aufweist, obwohl der Verlauf des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{FFC} am FFC bereits annähernd konstant ist (siehe Abbildung 6.7 unten). Der Grund dafür ist die in diesem Konzept zusätzlich variable aktive Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} , deren zeitlicher Verlauf in Abbildung 6.9 im unteren Diagramm dargestellt ist.

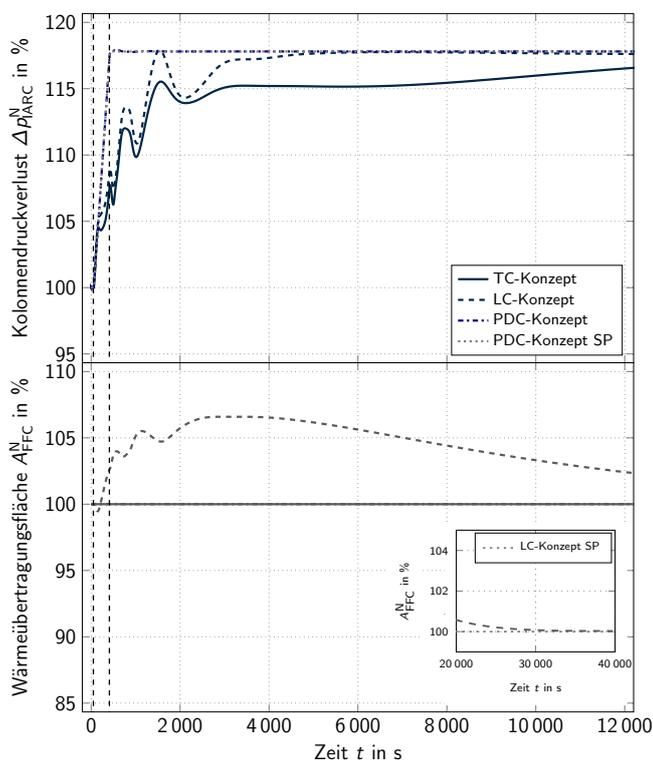


Abbildung 6.9: Zeitliche Verläufe des normierten IARC-Kolonnendruckverlusts (oben) und der normierten Wärmeübertragungsfläche des FFC (unten) über einen Zeitraum von 12 000 s

Nach einer Simulationszeit von $t \approx 4000$ s wird die aktive Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} im gleichen Ausmaß verringert, in dem die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{FFC} ansteigt.

Nach $t \approx 8000$ s erreicht der Verlauf des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{FFC} beim LC-Konzept einen annähernd konstanten Wert. Die aktive Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} erreicht ihren Sollwert nach etwa $t \approx 30000$ s simulierter Zeit (siehe Abbildung 6.9 unten vergrößerter Ausschnitt).

Zu diesem Zeitpunkt der Simulation erreichen alle weiteren Parameter des TC-Konzepts und LC-Konzepts ihre finalen stationären Werte. Im Zeitraum zwischen $t \approx 8000$ s und $t \approx 30000$ s sind jedoch nur marginale Änderungen des Anlagenzustands zu

erkennen. Diese reichen dennoch aus, um minimale Abweichungen in den zeitlichen Verläufen der relevanten Parameter zwischen dem LC-Konzept und dem TC-Konzept zu verursachen.

Um einen aussagekräftigen Vergleich der Konzepte zu ermöglichen, wird der Sollwert der aktiven Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} bei 100 % belassen. Es ist zu erkennen, dass die aktive Fläche zum Wärmeübergang A_{FFC} während der PGAN-Reduktion erhöht und somit von der erforderlichen Überdimensionierung des FFC Gebrauch gemacht wird.

Im oberen Diagramm der Abbildung 6.9 sind die zeitlichen Verläufe des Kolonnendruckverlusts Δp_{IARC} der IARC für alle Konzepte dargestellt. Bei dieser Größe konvergieren die zeitlichen Verläufe aller betrachteten Regelungskonzepte auf einen identischen Wert, obwohl sich der finale stationäre Anlagenzustand bei der Anwendung des PDC-Konzepts von den anderen unterscheidet.

Bei der Anwendung des TC-Konzepts wird der stationäre Anlagenzustand erst nach einem Simulationszeitraum von $t \approx 30\,000$ s erreicht und ist daher nicht in Abbildung 6.9 dargestellt. Die Veränderungen des IARC-Druckverlusts Δp_{IARC} nach $t \approx 8000$ s resultieren aus minimalen Veränderungen der IARC-Belastung. Bei der Anwendung des LC-Konzepts wird der Sollwert des Kolonnendruckverlusts bereits nach $t \approx 6000$ s erreicht. Bei der Anwendung des PDC-Konzepts folgt der Istwert des Kolonnendruckverlusts Δp_{IARC} seinem Sollwert instantan. Daher liegen die zeitlichen Verläufe von Ist- und Sollwert hier übereinander.

Die präsentierten zeitlichen Verläufe der Reglerausgänge der jeweiligen Regelungskonzepte zeigen, dass alle in Abbildung 6.3 abgebildeten Konzepte in der Lage sind, in einem angemessenen Zeitraum auf dieses Betriebsstörungsszenario zu reagieren und die Belastung der IARC entsprechend anzupassen.

Die Auswirkungen der jeweiligen Sollwertänderungen: ΔT_{FFC} (TC-Konzept), A_{FFC} (LC-Konzept) und Δp_{IARC} (PDC-Konzept) auf den Zustand der IARC sowie eine Erklärung für den unterschiedlichen Endzustand bei der Anwendung des PDC-Konzepts werden im nächsten Abschnitt präsentiert.

④ – Auswirkungen auf die IARC-Belastung

Um die Auswirkungen der Stellgrößenveränderungen der Regelungskonzepte auf die Belastung der IARC zu untersuchen, werden in Abbildung 6.10 auf der linken Seite die zeitlichen Verläufe der austretenden kolonneninternen Stoffmengenströme der obersten theoretischen Trennstufe der IARC ($\dot{N}_{\text{vap,IARC}}$ oben, $\dot{N}_{\text{liq,IARC}}$ unten) dargestellt. Weiter sind die Verläufe des O_2 -Stoffmengenanteils $x_{\text{O}_2,\text{GOXIC}}$ des GOXIC-Produkts, welches in flüssiger Form aus dem MC abgezogen wird, und die des Ar-Stoffmengenanteils $y_{\text{Ar,ATM}}$ des an die Umgebung abgeblasenen Ar-reichen Stroms ATM präsentiert.

Erwartungsgemäß verhalten sich die Verläufe der internen IARC-Ströme $\dot{N}_{\text{vap,IARC}}$ und $\dot{N}_{\text{liq,IARC}}$ für alle Konzepte analog zu den Verläufen des am FFC übertragenen

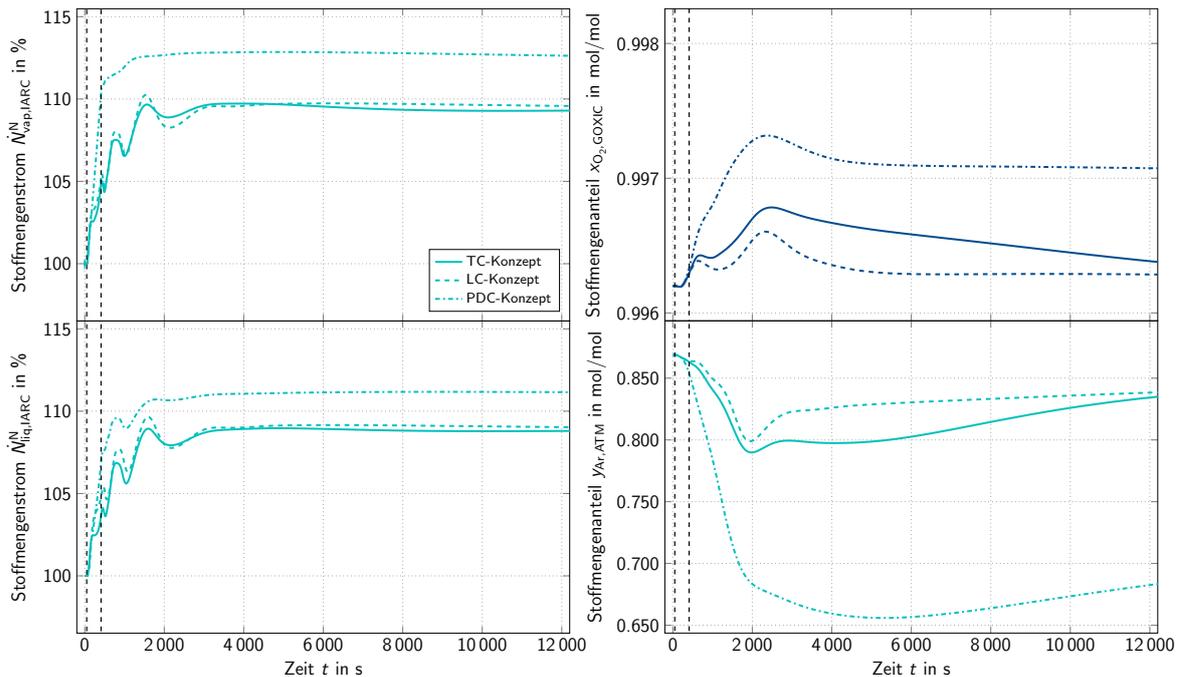


Abbildung 6.10: Zeitliche Verläufe des normierten IARC-internen Gasstroms (links oben), des normierten IARC-internen Flüssigstroms (links unten), des O_2 -Stoffmengenanteils des GOXIC-Produkts (rechts oben) und des Ar-Stoffmengenanteils des ATM-Stoffmengenstroms (rechts unten) über einen Zeitraum von 12000 s

Wärmestroms \dot{Q}_{FFC} (siehe Abbildung 6.7 unten). Hier wird nochmals verdeutlicht, dass bei der Anwendung des PDC-Konzepts nach einem simulierten Zeitraum von $t \approx 4000$ s und für das TC-Konzept und LC-Konzept nach $t \approx 8000$ s keine merklichen Veränderungen der IARC-Belastung mehr zu erkennen sind. Ein annähernd konstanter Verlauf von \dot{Q}_{FFC} ist gleichbedeutend mit einem stabilen Zustand der Fluidynamik in der IARC und kann als Indikator für das Erreichen eines neuen stabilen Zustands der gesamten ASU interpretiert werden.

Beim Verlauf des IARC-internen Gasstroms $\dot{N}_{\text{vap,IARC}}$ ist bei der Anwendung des PDC-Konzepts, verglichen mit dem Verlauf des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{FFC} des FFC (siehe Abbildung 6.7 unten), eine Dämpfung zu erkennen. Eine Erklärung dafür ist die verwendete Regelgröße des PDC-Konzepts. Durch eine temporäre Erhöhung des ATM-Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} wird im gleichen Maße die Gasbelastung der IARC erhöht. Daher wird für jedes lokale Minimum des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{FFC} des FFC die Menge an Ar-reichen Abgas im entsprechenden Maße erhöht, um den Sollwert des IARC-Kolonnendruckverlusts Δp_{IARC} zu erreichen (siehe Abbildung 6.9 oben). Durch die Phasenverschiebung von \dot{Q}_{FFC} und \dot{N}_{ATM} ergibt sich der geglättete zeitliche Verlauf des IARC-internen Gasstroms $\dot{N}_{\text{vap,IARC}}$. Da der ATM-Stoffmengenstrom an die Umgebung abgeblasen wird, ist diese Glättung jedoch nicht im IARC-internen Flüssigstrom zu erkennen.

Bei den weiteren Regelungskonzepten kann diese Glättung der IARC-Gasbelastung nicht beobachtet werden. Bei der Anwendung des LC-Konzepts ist dies auf die Notwendigkeit der manuellen Anpassung des Sollwerts des ATM-Stoffmengenstroms durch den zusätzlichen FC-Regelkreis zurückzuführen. Bezüglich des TC-Konzepts weisen die lokalen Maxima des Ar-reichen Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} eine deutliche geringere Ausprägung auf, was den Glättungseffekt nivelliert.

Auf der rechten Seite in Abbildung 6.10 sind die zeitlichen Verläufe des O₂-Stoffmengenanteils $x_{\text{O}_2,\text{GOXIC}}$ des GOXIC-Produkts, welches dem MC im flüssigen Zustand entnommen wird, im oberen Diagramm sowie die des Ar-Stoffmengenanteils $y_{\text{Ar,ATM}}$ des ATM-Stoffmengenstroms im unteren Diagramm dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass diese Größen eine gegenseitige Abhängigkeit aufweisen. Durch die geringe Anzahl an theoretischen Trennstufen der IARC wirkt sich bereits eine minimale Erhöhung von $x_{\text{O}_2,\text{GOXIC}}$ verringernd auf den Ar-Stoffmengenanteil $y_{\text{Ar,ATM}}$ aus.

Darüber hinaus wird hier deutlich, dass sich Konzentrationsverschiebungen verglichen mit der Kolonnenfluidodynamik auf größeren Zeitskalen abspielen, da nach einem Simulationszeitraum von $t = 12\,000\text{ s}$ die finalen Werte von $x_{\text{O}_2,\text{GOXIC}}$ und $y_{\text{Ar,ATM}}$ bei keinem Konzept erreicht werden. Dies ist auch die Begründung für die bestehenden geringfügigen Änderungen des Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} (siehe Abbildung 6.7 oben) oder der aktiven Wärmeübertragungsfläche A_{FFC} des FFC (siehe Abbildung 6.9 unten) auch nach Etablieren einer stabilen Fluidodynamik für das PDC-Konzept (nach $t \approx 4000\text{ s}$) sowie für das LC-Konzept und TC-Konzept (nach $t \approx 8000\text{ s}$). Bei der Anwendung des LC-Konzepts werden die finalen Stoffmengenanteile des neuen Endzustands verglichen mit dem TC-Konzept schneller erreicht. Die ist auf die manuelle Anpassung des Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} zurückzuführen. Daher kommt es beim LC-Konzept nicht zu einem anfänglichen Überschwingen des Ar-reichen Abgasstroms \dot{N}_{ATM} (siehe Abbildung 6.7 oben), was dazu führt, dass die Auslenkungen des O₂-Stoffmengenanteils $x_{\text{O}_2,\text{GOXIC}}$ des GOXIC-Produkts geringer ausfallen. Im weiteren Verlauf dieses Abschnitts wird auf den unterschiedlichen Endzustand der ASU bei der Anwendung des PDC-Konzepts eingegangen.

Phänomen multipler stationärer Zustände

Die gegenseitige Abhängigkeit der Zusammensetzungen im unteren Abschnitt der LPC und der IARC ist einer der Gründe für den abweichenden stationären Endzustand bei der Anwendung des PDC-Konzepts. Abweichende O₂- und Ar-Stoffmengenanteile $x_{\text{O}_2,\text{GOXIC}}$ und $y_{\text{Ar,ATM}}$ des GOXIC-Produkts sowie des an die Umgebung abgeblasenen Ar-reichen Stroms ATM resultieren zwangsläufig in einer unterschiedlichen Zusammensetzung des in die IARC eintretenden Gasstroms. Um dies zu verdeutlichen, werden in Abbildung 6.11 die zeitlichen Verläufe der Ar- und O₂-Stoffmengenanteile des gasförmigen IARC-Eintrittstroms für das PDC-Konzept und TC-Konzept dargestellt. Das LC-Konzept wird bei dieser Betrachtung nicht berücksichtigt, da die gewonnenen Erkenntnisse des TC-Konzepts auch für das LC-Konzept gültig sind. Im Gegensatz zu den restlichen Abbildungen in dieser Studie sind hier die Verläufe über einen Simulationszeitraum von

35 000 s dargestellt, um sicherzugehen, dass ein stationärer Zustand der Stoffmengenanteile erreicht ist.

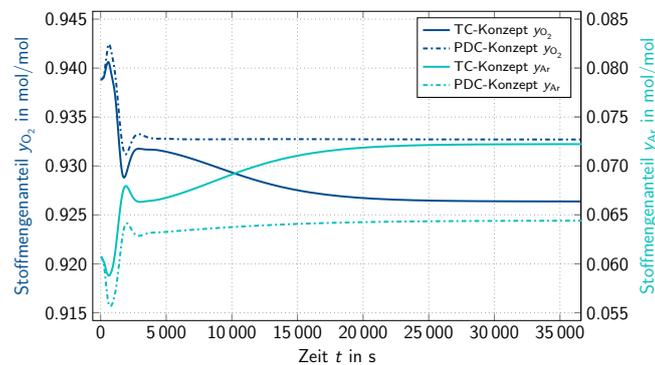


Abbildung 6.11: Zeitliche Verläufe der Ar- und O₂-Stoffmengenanteile des gasförmigen IARC-Eintrittstroms über einen Zeitraum von 35 000 s

Bei der Anwendung des PDC-Konzepts ist der erreichte stationäre Endwert des O₂-Stoffmengenanteils von $y_{O_2} = 0.9327 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ größer als bei der Anwendung des TC-Konzepts mit $y_{O_2} = 0.9263 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$. Die abweichende Zusammensetzung des gasförmigen IARC-Feeds ergibt sich aus den unterschiedlichen Stoffmengenströmen \dot{N}_{ATM} des Ar-reichen Stroms, der an die Umgebung abgeblasen wird (siehe Abbildung 6.7 oben). Aufgrund des höheren Stoffmengenstroms \dot{N}_{ATM} an Ar-reichem Abgas, der dem Prozess bei der Anwendung des PDC-Konzepts entzogen wird, ist auch der O₂-Stoffmengenanteil im MC höher. Dies entspricht der Idee der Ar-Abtrennung in einer ASU (siehe Abbildung 6.10 rechts oben). Daher ist auch der O₂-Stoffmengenanteil des gasförmigen IARC-Feedstroms während der PGAN-Reduktion sowie beim Erreichen des stationären Endzustands höher. Auch wenn die Konzentrationsunterschiede beim Eintritt in die IARC minimal sind, hat dies enorme Auswirkungen auf die Trennwirkung. In Abbildung 6.12 wird die Zusammensetzung der Gasphase von Ar und O₂ über die Höhe der IARC für den stationären Endzustand bei $t = 35\,000$ s für das PDC-Konzept und TC-Konzept dargestellt.

Es wird ersichtlich, dass ein Unterschied von $\Delta y_{\text{Ar}} = 0.0079 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ am Eintritt in die IARC ausreichend ist, um die ablaufende Stofftrennung merklich zu beeinflussen. Mit der Anwendung des PDC-Konzepts kann das Ar am Kopf der IARC lediglich auf einen Stoffmengenanteil von $y_{\text{Ar,top}} = 0.7163 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ angereichert werden kann, wohingegen bei der Anwendung des TC-Konzepts ein Stoffmengenanteil von $y_{\text{Ar,top}} = 0.8498 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ erreicht wird. Hier werden die Nichtlinearitäten bei der Aufreinigung des Ar-reichen Stroms deutlich.

Trotz der abweichenden Konzentrationsprofile und Belastungen der IARC (siehe Abbildung 6.10 links) bei der Anwendung der unterschiedlichen Regelungskonzepte wird ein identischer Wert für den Kolonnendruckverlust Δp_{IARC} erreicht (siehe Abbildung 6.9 oben). Dies ist auf die Abhängigkeit des Kolonnendruckverlusts auf den thermodynamischen Zustand des aufsteigenden Gasstroms \dot{N}_{IARC} zurückzuführen. Die Verteilung der

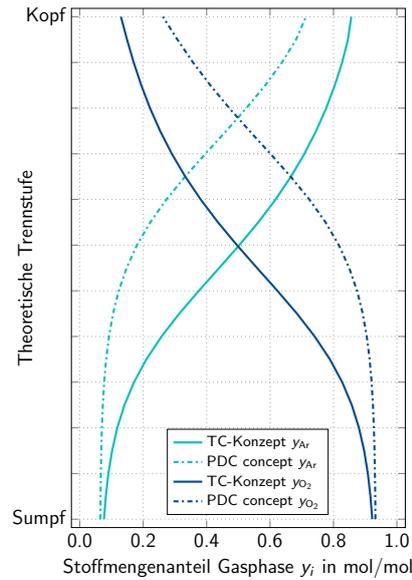


Abbildung 6.12: Verteilung der Ar- und O₂-Stoffmengenanteile über die IARC-Höhe bei $t = 35\,000\text{ s}$

Druckverlustwerte der theoretischen Trennstufen der IARC über die Kolonnenhöhe bei einem Zeitpunkt von $t = 35\,000\text{ s}$ ist in Abbildung 6.13 dargestellt.

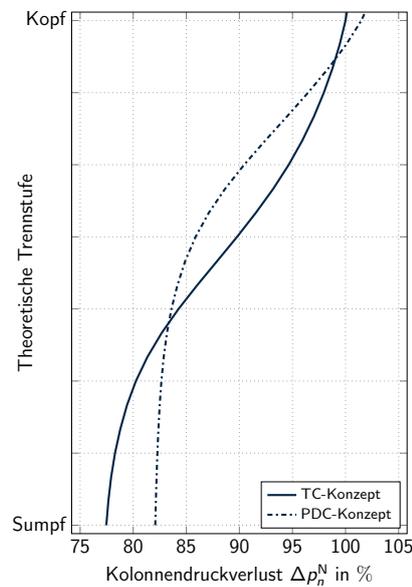


Abbildung 6.13: Normierte Verteilung der Druckverlustwerte der theoretischen Trennstufen der IARC über die Kolonnenhöhe bei $t = 35\,000\text{ s}$

Die spezifischen Druckverlustwerte sind auf den Wert des Druckverlusts der obersten theoretischen Trennstufe der IARC normiert, der sich bei der Anwendung des TC-Konzepts einstellt. Es ist zu erkennen, dass sich für beide Konzepte die Verteilung der Druckverlustwerte analog zur Entwicklung des Ar-Stoffmengenanteils y_{Ar} über die IARC-Höhe verhält (siehe Abbildung 6.12). Für beide Konzepte ergibt sich der gleiche Wert für den Gesamtdruckverlust bei unterschiedlicher Verteilung über die

Kolonnenhöhe. Daher ist es möglich, dass sich bei der Anwendung des PDC-Konzepts, welches den Gesamtdruckverlust Δp_{IARC} als Regelgröße verwendet, bei identischem Sollwert für Δp_{IARC} ein abweichender stationärer Endzustand einstellen kann.

Es liegt also keine eindeutige Zuordnung zwischen dem übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{FFC} des FFC, welcher bestimmend für die Gasbelastung der IARC ist, und dem Gesamtdruckverlust der IARC Δp_{IARC} vor. Da es dem PDC möglich ist, der Sollwertänderung unmittelbar zu folgen (siehe Abbildung 6.9 oben), ergibt sich in der IARC und dem unteren Teil der LPC ein zum TC-Konzept abweichender Konzentrationsverlauf über die Zeit. Dies führt zu einem unterschiedlichen stationären Endzustand bei der Anwendung des PDC-Konzepts. Diese Erkenntnis unterstreicht die Notwendigkeit dynamischer Untersuchungen zur Bewertung der Zuverlässigkeit von Regelungskonzepten für die IARC während des Anlagendesigns, da dies in stationären Betrachtungen nicht erkennbar ist.

Zusätzlich wird die Antwort der jeweiligen Regelgröße der in Abbildung 6.3 präsentierten Regelungskonzepte mittels integraler Fehlerkriterien, engl.: *integral error criteria*, verglichen [SEBORG ET AL. 2017]. Dazu werden in Tabelle 6.2 die Werte für das Integral des absoluten Fehlers, engl.: *integral of the absolute value of the error* (IAE), das Integral des quadrierten Fehlers, engl.: *integral of the squared error* (ISE), und das Integral des zeitlich gewichteten absoluten Fehlers, engl.: *integral of the time-weighted absolute error* (ITAE), dargestellt. Für die Integration ist eine Betrachtung einer Zeitspanne von 30 000 s ausreichend, da bis zu diesem Zeitpunkt für alle betrachteten Regelgrößen bereits ein stationärer Endzustand erreicht ist. Dieser große Zeitraum ist unter anderem ein Grund für die Größenordnung der ITAE-Werte.

Tabelle 6.2: Integrale Fehlerkriterien während der PGAN-Reduktion

Regelungskonzept	IAE	ISE	ITAE
TC	1451.51	801.91	$3.8 \cdot 10^6$
LC	3702.37	2613.29	$2.0 \cdot 10^7$
PDC	22.46	0.45	$2.4 \cdot 10^4$

Da bei allen Regelungskonzepten die Zahlenwerte für das ISE am kleinsten sind, werden große Fehler über einen langen Zeitraum vermieden. Dies bedeutet im Umkehrschluss, dass alle Konzepte in der Lage sind, schnell auf die Sollwertänderungen zu reagieren [SEBORG ET AL. 2017]. Allerdings ist zu erkennen, dass kleine Fehler über einen längeren Zeitraum bestehen bleiben, da die Zahlenwerte des ITAE entsprechend groß sind, was mit der graphischen Auswertung übereinstimmt. Bei allen Kriterien schneidet das PDC-Konzept am besten und das LC-Konzept am schlechtesten ab. Dies unterstreicht die bisherigen Ergebnisse, die ebenfalls besagen, dass das PDC-Konzept die schnellste Anpassung an die neuen Sollwerte ermöglicht, jedoch in einen anderen Endzustand konvergiert. Dieser abweichende Zustand wird bei der Berechnung der integralen Fehlerkriterien nicht berücksichtigt.

6.1.3 Zusammenfassung und Fazit

Zusammenfassend zeigt das betrachtete Szenario der PGAN-Reduktion, dass alle drei in Abbildung 6.3 vorgestellten Regelungskonzepte in der Lage sind, adäquat auf die Betriebsstörung zu reagieren und in einem angemessenen Zeitraum einen neuen stabilen Anlagenzustand herzustellen. Weiter werden durch diese Studie die Herausforderungen gezeigt, den bereits hochintegrierten und optimierten Prozess der kryogenen Luftzerlegung mit Ar-Abtrennung zu intensivieren. Durch die thermische Kopplung der IARC, LPC und HPC mittels FFC und MC wirken sich Änderungen im abgezogenen Stoffmengenstrom \dot{N}_{ATM} umgehend auf die Fluidodynamik aller Kolonnen aus. Gegenüber einer CARC-Topologie propagieren sich Änderungen in der Zusammensetzung des GOXIC-Produkts schneller auf den Ar-reichen Strom ATM, da es keinen zusätzlichen Kolonnensumpf gibt, der als Speicherterm fungiert und Konzentrationsverschiebungen puffert. Somit steigt die Anforderung an die Regelaufgabe für die IARC. Daher ist es besonders wichtig, bereits in der Designphase über einen DT zu verfügen, um das Kriterium des zuverlässigen Betriebs bereits in das ASU-Design fließen zu lassen.

Aus der präsentierten Studie geht hervor, dass sowohl mit dem TC-Konzept als auch mit dem LC-Konzept ein zuverlässiger Anlagenbetrieb gewährleistet werden kann. Beide Konzepte zeigen eine ähnliche Antwort auf das Störszenario und konvergieren in denselben Endzustand. Am wichtigsten ist, dass in beiden Fällen eine eindeutige Zuordnung zwischen der jeweiligen Regelgröße und dem übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{FFC} des FFC vorhanden ist. Somit gibt es für einen bestimmten Wert des entsprechenden Reglerausgangs genau eine Belastung der IARC und umgekehrt. Diese Eindeutigkeit zwischen Regelgröße und Reglerausgang ist aufgrund der Abhängigkeit des Kolonnen-druckverlusts vom thermodynamischen Zustand des aufsteigenden Gasstroms \dot{N}_{IARC} bei der Anwendung des PDC-Konzepts nicht gegeben. Als Ergebnis dieser Studie kann das PDC-Konzept aufgrund dieser Tatsache mangels Zuverlässigkeit (multipler stationärer Zustand) nicht für den Einsatz an einer realen Anlage empfohlen werden. Das Phänomen multipler stationärer Zustände bei DWCs ist eine bekannte Problemstellung und wird in der Literatur seit fast 30 Jahren untersucht [KIENLE ET AL. 1995]. Im Rahmen dieser Dissertation wird diese Fragestellung jedoch nicht weiter verfolgt.

Verglichen mit den anderen Konzepten wird für die Anwendung des LC-Konzepts zusätzliches Equipment (großes Flüssigventil und Durchflussmessung für die Gasströmung der IARC außerhalb der Kolonne) sowie eine Überdimensionierung des FFC benötigt. Daher steht dieses Konzept im Widerspruch zu der Idee der Prozessintensivierung, welches durch Integration von Grundoperationen das benötigte Equipment reduzieren soll. Somit ist das TC-Konzept als zu verwendendes Regelungskonzept für einen zuverlässigen Betrieb einer realen Anlage zu empfehlen. Zusätzlich wird dies durch die integralen Fehlerkriterien aus Tabelle 6.2 bestätigt, da das TC-Konzept gegenüber dem LC-Konzept in allen Kriterien besser abschneidet.

Darüber hinaus wurden für die Evaluation der Regelungskonzepte zusätzliche Szenarien wie z.B. ein schneller PGAN-Anstieg, eine Lastreduktion der gesamten ASU von 100 - 70 % und das Verhalten während eines N_2 -Durchbruchs betrachtet. Die Ergebnisse dieser

Betrachtungen decken sich mit den Erkenntnissen aus der hier präsentierten Studie und sind deshalb nicht weiter ausgeführt.

Die in diesem Abschnitt präsentierte Studie hebt die Vorteile eines DT während der Designphase einer ASU hervor. Die durch den DT verfügbare Möglichkeit, bereits vor dem Bau der Anlage zu bewerten, ob eine ASU-Topologie zuverlässig betrieben werden kann, bietet neue Möglichkeiten für die Entwicklung komplexer Anlagentopologien. In diesem Fall wird durch die mechanische und thermische Integration der ARC in die LPC der Gesamtenergieverbrauch der ASU im Vergleich zum konventionellen Design um ca. 0.6 % reduziert. Durch die *in silico* Betrachtung der Anlagendynamik mittels DT kann erfolgreich gezeigt werden, dass dieses energieeffiziente Anlagendesign nicht nur auf der Grundlage thermodynamischer Überlegungen möglich ist, sondern auch trotz der erhöhten Komplexität der Regelungsaufgabe zuverlässig betrieben werden kann. Die Anwendung eines DT bietet somit neue Möglichkeiten zur energetischen Optimierung des Prozesses der kryogenen Luftzerlegung.

Im nachfolgenden Abschnitt 6.2 wird ein DT einer ASU mit voll ausgeprägtem Ar-System verwendet, um durch systematische *in silico* Analysen Maßnahmen zu identifizieren, die es erlauben, die Lastwechselgeschwindigkeiten erheblich zu erhöhen.

6.2 Erhöhung der Lastflexibilität – Analyse und Verbesserung von Lastwechselvorgängen industriell eingesetzter Luftzerlegungsanlagen

In diesem Abschnitt wird ein DT einer typischen industriell eingesetzten ASU mit der Produktion von hochreinem Ar analog zu Abbildung 3.2 präsentiert. Der hohe Grad an Prozess- und Wärmeintegration optimiert auf der einen Seite die Energieeffizienz dieser Anlagen, wirkt sich jedoch auf der anderen Seite limitierend auf die maximal möglichen Lastwechselgeschwindigkeiten aus und schränkt somit die Flexibilität ein. Daher sollen in dieser Studie *in silico* Analysen von Lastwechselvorgängen durchgeführt werden, die dem Stand der Technik entsprechen. Zunächst werden Einschränkungen identifiziert, die sich limitierend auf die Lastwechselgeschwindigkeit auswirken (*bottleneck identification*). Basierend darauf werden dann betriebstechnische Maßnahmen abgeleitet, engl.: *debottlenecking*, die eine Erhöhung der Lastwechselgeschwindigkeiten erlauben und somit die Anlagenflexibilität erhöhen. Im Rahmen dieser Studie wird das innovative Flüssigkeitsmanagement, engl.: *smart liquid management* (SLM), entwickelt, welches in Abschnitt 6.2.2 im Detail erklärt wird. Der DT ermöglicht dabei eine detaillierte Analyse von (Stör-) Szenarien, die beispielsweise die vom Kunden geforderten Anforderungen an die Produktreinheiten verletzen oder einen langwierigen Produktionsausfall nach sich ziehen, mit Hilfe von Simulationsstudien. Darüber hinaus erlaubt der DT eine holistische Betrachtung und Auswertung der Anlagendaten während eines Lastwechselvorgangs und ist nicht durch die eingebaute Messtechnik limitiert. Daher werden mit dieser

Studie auch die Vorteile einer Anwendung des DT als Softsensor für den Anlagenbetrieb hervorgehoben.

Bezogen auf den Anlagenlebenszyklus, dargestellt in Abbildung 4.2, ist diese Studie in *Stufe 5* – Betriebsoptimierung einzuordnen. Die verwendete virtuelle ASU basiert hier auf dem bestehenden optimierten Prozess- und Equipmentdesign aus separaten stationären Simulationen. Bei Letzterem wird nicht nur das Design von Schlüssequipment wie Rektifikationskolonnen, Verdampfer/Kondensatoren oder Wärmeübertrager berücksichtigt, sondern auch Ventil- und Maschinenmodelle analog zu Abschnitt 4.3 verwendet. Die nachfolgenden Simulationsstudien erfordern die höchste Modellgranularität der virtuellen ASU. Diese ist notwendig, um den Anlagenbetrieb realitätsgetreu nachstellen zu können und somit sicherzustellen, dass die gewonnenen Erkenntnisse auf die Realanlage übertragbar sind.

In der Regelungspyramide, dargestellt in Abbildung 3.8, findet sich die nachfolgende Studie auf *Level 1* (Basisregelung) wieder. Bzgl. der Literatur ist diese Studie in Abschnitt 3.3 bei den Studien zur Identifizierung von Engpässen für einen flexiblen Betrieb, Lastwechselanalysen sowie beim Einfluss von vorgezogenen Stellgrößenänderungen einzuordnen.

In Abschnitt 4.1.1 wird der potentielle Mehrwert des DT als Softsensor im Rahmen von offline Studien hervorgehoben, da die Echtzeitfähigkeit nicht gewährleistet werden kann. In dieser Studie werden die Lastwechselvorgänge einer ASU mit Ar-Produktion zunächst systematisch analysiert und unter Verwendung von Kennzahlen, die u.a. nicht messbare Größen wie kolonneninterne Strömungen beinhalten, beschleunigt. Die stationären Start- und Endzustände der betrachteten Lastwechselvorgänge basieren auf Betriebs- und Designdaten einer Bestandsanlage der Firma Linde. Dabei werden die Sollwerte der Basisregelung der Realanlage als Vorgaben für die Simulation verwendet und basierend darauf der restliche Anlagenzustand berechnet. Diese Studie enthält Teile aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2022b), welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde. Im folgenden Abschnitt wird die ASU-Topologie mit Fokus auf die Ar-Gewinnung präsentiert.

6.2.1 ASU-Topologie und Herausforderungen des Ar-Systems

Ein Fließbild der betrachteten ASU-Topologie inklusive der verwendeten Basisregelung ist in Abbildung 6.14 dargestellt. Dabei handelt es sich um eine vereinfachte Darstellung von Abbildung 3.2.

Analog zur Studie in Abschnitt 6.1 werden bei dem verwendeten DT im Gegensatz zur ASU-Topologie in Abbildung 3.2 die Vorkühlung (Prozessblock (b)) sowie die Luftreinigung durch die Adsorber (Prozessblock (c)) nicht berücksichtigt. Die in Prozessblock (a) angesaugte und verdichtete Prozessluft wird als bereits gereinigt und vorgekühlt angenommen. Die restliche Topologie stimmt mit der in Abbildung 3.2 dargestellten ASU überein. Es handelt sich hier um eine Anlage, die hauptsächlich gasförmige Produkte sowie flüssiges Ar (LAR) produziert. Die gasförmigen Hauptprodukte sind GOX und

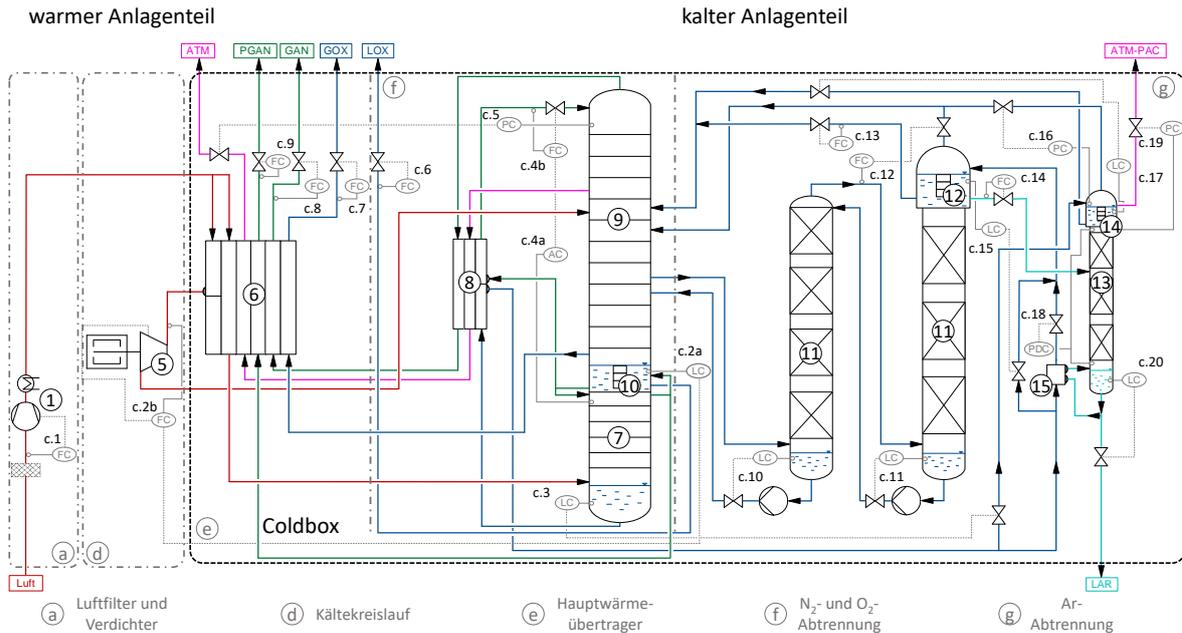


Abbildung 6.14: Darstellung des Verfahrensfließbilds einer ASU mit Ar-Produktion inklusive Basisregelung entsprechend Tabelle 6.3 des in dieser Studie erstellten DT

GAN. Zusätzlich wird eine geringe Menge an PGAN am Kopf der HPC abgezogen und als Instrumentengas verwendet. Darüber hinaus wird ein N_2 -reicher Strom (ATM) im oberen Drittel der LPC abgezogen und an die Atmosphäre abgeblasen. Dieser wird zur Regelung des Kopfdrucks der LPC verwendet. Am Kopf der PAC wird ebenfalls ein N_2 -reicher Strom (ATM-PAC) zur Atmosphäre abgeblasen. Der LOX-Strom dient zur Spülung des MC aus Gründen der Prozesssicherheit (siehe Abschnitt 3.1). Nachfolgend wird die Basisregelung dieser ASU-Topologie beschrieben.

Die Funktionen und Bezeichnungen der einzelnen Regelkreise sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst. AC steht dabei für Analysenregelung, engl.: *analysis control*. Die Zuweisung der Ströme CGO (unreiner gasförmiger Sauerstoff, engl.: *crude gaseous oxygen*) und CGAR ist in Abbildung 6.15 dargestellt. Darüber hinaus kennzeichnet der Index 1 den Teil der CAC, welcher der LPC direkt nachgeschaltet ist.

Die Basisregelung entspricht dem Stand der Technik einer ASU mit Ar-Produktion. Eine Besonderheit sind die beiden Kaskadenregelungen $c.2a$ und $c.2b$ für den Füllstand des MC sowie $c.4a$ und $c.4b$ für den N_2 -reichen Rücklauf in die LPC. Es handelt sich um sog. *Trimm*-Kaskaden. Dabei wird der manuelle Reglerausgang des Regelkreises mit dem Suffix a als Störgröße für den Regelkreis vorgegeben (Vorsteuerung, engl.: *feedforward control*). Zusätzlich werden in einem vorgegebenen Intervall $\varepsilon_{\text{Trimm}}$ Korrekturen um die manuelle Vorgabe erlaubt, um die Sollwertvorgabe zu erfüllen (Regelung, engl.: *feedback control*). Als Grundlage für die Einstellungen der Basisregelung wurde analog zur Studie in Abschnitt 6.1 die SIMC-Methode mit FOPTD-Modellen verwendet. Im folgenden Abschnitt wird auf die zusätzliche Komplexität, welche durch die Abtrennung und Aufreinigung von Ar als Wertprodukt entsteht, eingegangen. Weiter wird auf

Tabelle 6.3: Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit Ar-Produktion nach Abbildung 6.14

Bezeichnung	Art	Funktionsbeschreibung
c.1	FC	Regelung der Luftmenge
c.2a	LC	Regelung des MC-Füllstands
c.2b	FC	als Trimm-Kaskadenregelung
c.3	LC	Regelung des HPC-Füllstands
c.4a	AC	Regelung der N ₂ -Reinheit am Kopf der
c.4b	FC	HPC als Trimm-Kaskadenregelung
c.5	PC	Regelung des LPC-Kopfdrucks
c.6	FC	Regelung der Menge an LOX
c.7	FC	Regelung der Menge an GOX
c.8	FC	Regelung der Menge an GAN
c.9	FC	Regelung der Menge an PGAN
c.10	LC	Regelung des CAC ₁ -Füllstands
c.11	LC	Regelung des CAC ₂ Füllstands
c.12	FC	Regelung der Menge an CGO über den Druck in ⑫
c.13	FC	Regelung der Menge an Flüssigkeit aus ⑫
c.14	FC	Regelung der Menge an CGAR
c.15	LC	Regelung des Füllstands von ⑫
c.16	PC	Regelung des Drucks von ⑭
c.17	LC	Regelung des Füllstands von ⑭
c.18	PDC	Regelung des Differenzdrucks der PAC
c.19	PC	Regelung des PAC-Kopfdrucks
c.20	LC	Regelung des PAC-Sumpffüllstands

die dadurch resultierenden Limitierungen bei Lastwechselfvorgängen einer ASU mit Ar-Produktion eingegangen.

Komplexität des Ar-Systems

Der Mittelsieder Ar ist die dritthäufigste Komponente der Luft. Jedoch ist der Stoffmengenanteil mit $y_{\text{Ar,Luft}} = 0.00932 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ (siehe Tabelle 3.1) sehr gering. Die Trennung und Aufreinigung von Ar ist mit hohem Aufwand und zusätzlichen Equipmentanforderungen verbunden. Darüber hinaus ergeben sich durch den erhöhten Grad an Prozess- und Wärmeintegration Grenzen für die maximale Lastwechselgeschwindigkeit. In Abbildung 6.15 ist ein detaillierter Ausschnitt der Ar-Abtrennung (Prozessblock ⑧ in Abbildung 6.14) dargestellt.

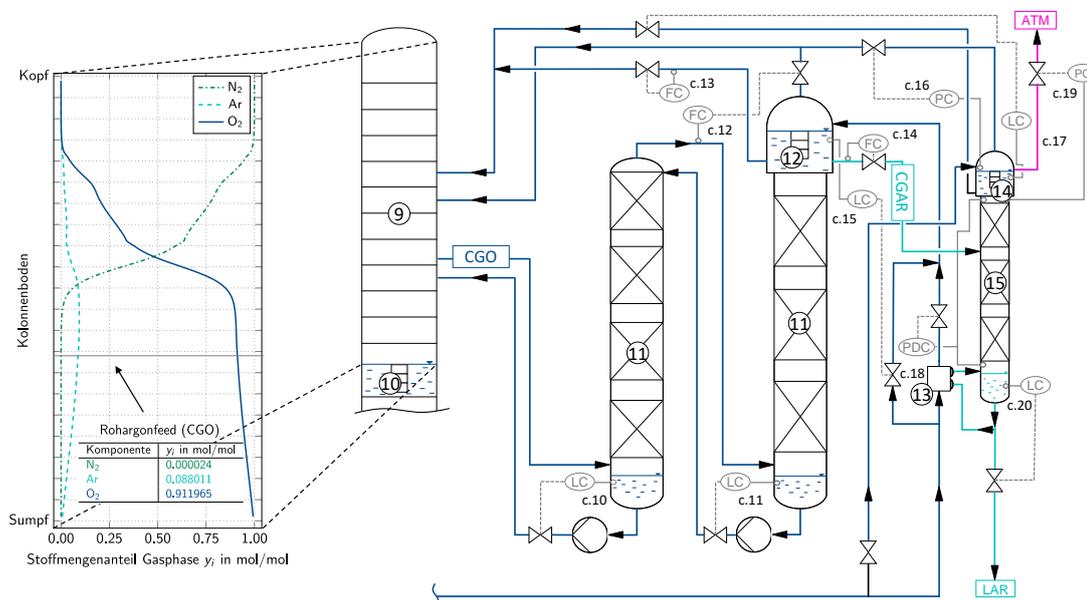


Abbildung 6.15: Detaillierte Darstellung eines typischen Konzentrationsprofils der Gasphase der LPC einschließlich der Lage und Zusammensetzung des CGO-Stroms (Rohargonfeed) sowie der Ar-Abtrennung

Der CGO-Strom, welcher gasförmig in die CAC gespeist wird, wird auf einer geeigneten Trennstufe der LPC entnommen, an der sich der Mittelsieder Ar anreichert. In Abbildung 6.15 ist ein typisches Konzentrationsprofil der LPC einschließlich der Lage des Abzugsbodens und einer typischen Zusammensetzung des CGO-Stroms dargestellt. Dieser besteht hauptsächlich aus O_2 , einer größeren Menge Ar und Spuren von N_2 . Der Abzugsboden befindet sich im unteren Drittel der LPC leicht unterhalb des maximalen Stoffmengenanteils des Mittelsieders. Der Grund dafür ist die erhöhte N_2 -Konzentration direkt oberhalb des Ar Maximums. Ein zu hoher N_2 -Anteil im CGO-Strom muss vermieden werden, um die Produktion von hochreinem Ar gewährleisten zu können. Eine detaillierte Erklärung dafür wird im Laufe des Abschnitts gegeben.

Neben der hohen Anzahl an theoretischen Trennstufen ($n_{\text{CAC}} \approx 200$), die für die Trennung von Ar und O_2 aufgrund der geringen Siedepunktsdifferenz (siehe Abbildung 3.3) erforderlich ist, müssen die Hochleistungspackungen auch einen geringen Druckverlust aufweisen, da aufgrund der thermischen Kopplung des Rohargon-Verdampfer/Kondensators das Druckniveau des CGO-Stroms im Betriebsbereich der LPC $p_{\text{LPC}} \approx 1.2 - 1.6$ bar liegt.

Der Rücklauf für die CAC wird durch die Kondensation des aufsteigenden Rohargons CGAR im Rohargon-Verdampfer/Kondensator bereitgestellt. Dabei wird der CLOP-Strom, welcher bei erhöhtem Druck auf der Verdampferseite vorliegt, durch die Aufnahme der Kondensationswärme verdampft. Die Menge an Rücklauf für die CAC ist abhängig von der Temperaturdifferenz $\Delta T_{\text{CAC}} = T_{\text{dew,CGAR}} - T_{\text{bub,CLOP}}$ der entsprechenden Tau- und Siedepunkte der Kondensator- und Verdampferseite. Dabei sind der Druck und die Zusammensetzung des jeweiligen Holdups ausschlaggebend.

Auf der Verdampferseite ist der Druck für die Siedetemperatur $T_{\text{bub,CLOP}}$ bestimmend, da die CLOP-Zusammensetzung über weite Teile des Betriebsbereichs der ASU nahezu konstant ist. Der Druck auf der Verdampferseite (c.12) beeinflusst die Siedetemperatur $T_{\text{bub,CLOP}}$, was wiederum direkten Einfluss auf den übertragenen Wärmestrom am Rohargon-Verdampfer/Kondensator hat und somit den Rücklauf bestimmt.

Auf der Kondensatorseite ist die Zusammensetzung des Rohargonstroms CGAR entscheidend. Einerseits ist es dabei essentiell, dass der N_2 -Stoffmengenanteil im CGO-Strom minimal gehalten wird (siehe Abbildung 6.15 $y_{\text{N}_2,\text{CGO}} = 2.4 \cdot 10^{-5} \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$). Ein Anstieg des Stoffmengenanteils des Leicht sieders N_2 im CGO-Strom führt zu einer Erniedrigung der Tautemperatur $T_{\text{dew,CGAR}}$ des Rohargons CGAR. Folglich nimmt die treibende Temperaturdifferenz ΔT_{CAC} am Rohargon-Verdampfer/Kondensator ab. Bei einem zu großen Stoffmengenanteil von N_2 im CGAR ist die CGAR-Tautemperatur unterhalb der CLOP-Siedetemperatur auf der Verdampferseite ($T_{\text{dew,CAr}} \leq T_{\text{bub,CLOP}}$). Das führt dazu, dass kein Gas mehr kondensieren kann und der flüssige Rücklauf in der CAC zum Erliegen kommt. Folglich muss eine Anreicherung an N_2 im CGO-Strom verhindert werden, da dies einen langwierigen Produktionsausfall nach sich zieht.

Andererseits hat das Ar-Produkt LAR hohe Reinheitsanforderungen. Diese definieren die maximal erlaubte Menge an O_2 . In der nachfolgenden Studie werden maximale Unreinheiten von $x_{\text{O}_2,\text{LAR}} = 5$ ppm toleriert [LINDE GMBH, MERCHANT AND PACKAGED GASES 2020]. Es kann davon ausgegangen werden, dass der O_2 -Stoffmengenanteil $x_{\text{O}_2,\text{LAR}}$ im LAR in etwa dem O_2 -Stoffmengenanteil $y_{\text{O}_2,\text{LAR}}$ im CGAR entspricht. Daher gilt dieser Grenzwert auch für den CGAR-Strom. Ein O_2 -Überschuss im CGO-Strom führt aufgrund der ähnlichen Siedetemperaturen von Ar und O_2 nicht zu einem Zusammenbruch der Kondensation am Rohargon-Verdampfer/Kondensator. Weitere Reinheitsanforderungen an die (Haupt-) Produkte der betrachteten ASU sind in Tabelle 6.4 aufgelistet [LINDE GMBH, MERCHANT AND PACKAGED GASES 2020].

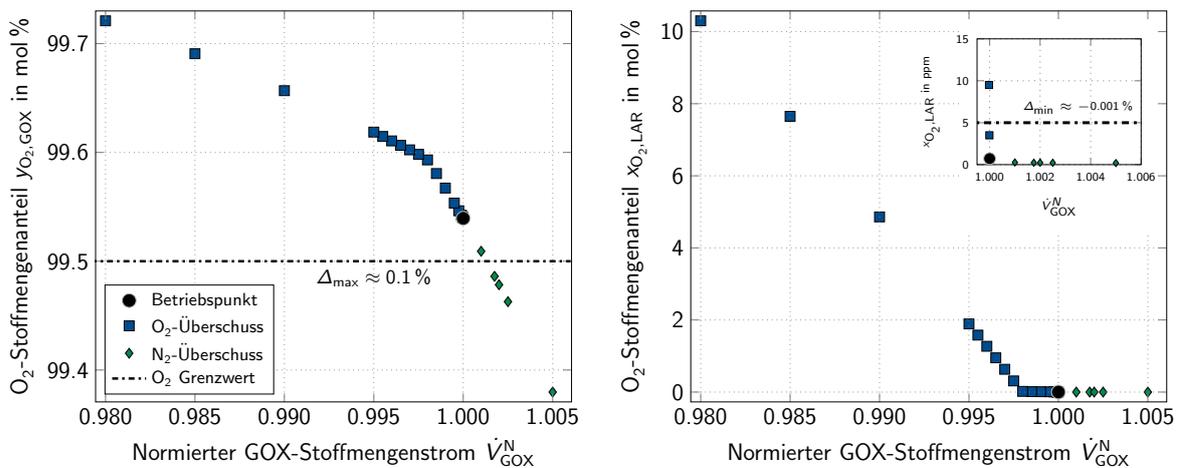
Die Einhaltung der hohen Reinheitsanforderungen während eines Lastwechsellvorgangs ist bei einer ASU mit Ar-Abtrennung besonders herausfordernd. Um zu verhindern, dass

Tabelle 6.4: Reinheitsanforderungen an die (Haupt-) Produkte der ASU-Topologie nach Abbildung 6.14

Produktstrom	Grenzwert für $y_{O_2}(x_{O_2})$
CGAR (LAR)	≤ 5 ppm
PGAN	≤ 5 ppm
GAN	≤ 5 ppm
GOX	$\geq 0.995 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$

es zu unerwünschten temporären Konzentrationsverschiebungen während des Vorgangs kommt, ist eine Vorsichtsmaßnahme, die maximale Lastwechselgeschwindigkeit zu limitieren. So können Änderungen der fluiddynamischen Verhältnisse in den Rektifikationskolonnen verhindert werden, welche sich auf die Trennwirkung auswirken.

Darüber hinaus besteht eine starke Abhängigkeit des CGO-Stroms vom GOX-Produkt. Dies unterstreicht den hohen Grad der Prozessintegration einer ASU mit Ar-Abtrennung. Zur Veranschaulichung der Auswirkungen von Veränderungen der GOX-Produktionsmenge auf das Ar-System ist in Abbildung 6.16 eine stationäre Parameterstudie der Menge des GOX-Produktstroms auf die GOX- und LAR-Produktreinheiten dargestellt.

**Abbildung 6.16:** Variation der normierten GOX-Produktmenge – Einfluss auf das GOX-Produkt (links) und auf das LAR-Produkt (rechts)

Für die Studie in Abbildung 6.16 wird die Menge des GOX-Produktstroms um den Betriebspunkt variiert (von $\Delta = -1.2\%$ bis $\Delta = 0.5\%$), um eine Störung im Anlagenbetrieb darzustellen. Eine Erhöhung des GOX-Stroms führt zu einer Verringerung der Reinheit und umgekehrt. Die maximale Variation der Produktmenge nach oben wird durch die minimale Reinheitsanforderung begrenzt (siehe Abbildung 6.16 links). Die maximale Abweichung der GOX-Produktmenge beträgt $\Delta_{max} \approx 0.1\%$. Wird diese darüber hinaus erhöht, wird zunächst die Reinheitsanforderung für die O_2 -Reinheit verletzt, was schließlich zum Zusammenbruch des Ar-Systems durch eine Anreicherung von N_2 im CGO-Strom führt.

Eine Variation der GOX-Produktmenge nach unten wird durch die maximal erlaubte O_2 -Verunreinigung im LAR begrenzt. Dies ist in Abbildung 6.16 zu erkennen. Hier ist nur eine Abweichung von maximal $\Delta_{\min} \approx -0.001\%$ möglich, ohne die Reinheitsanforderung zu verletzen. Dies lässt darauf schließen, dass die Menge an LAR-Produkt im initialen Betriebspunkt bereits maximiert ist. In Abbildung 6.17 sind im linken Diagramm die Konzentrationsprofile der Gasphase der CAC bei $\Delta = -0.001\%$ und $\Delta = -0.0025\%$ und im rechten Diagramm die entsprechenden Verläufe des O_2 -Stoffmengenanteils im obersten Packungsbett der CAC in einer logarithmischen Skala dargestellt.

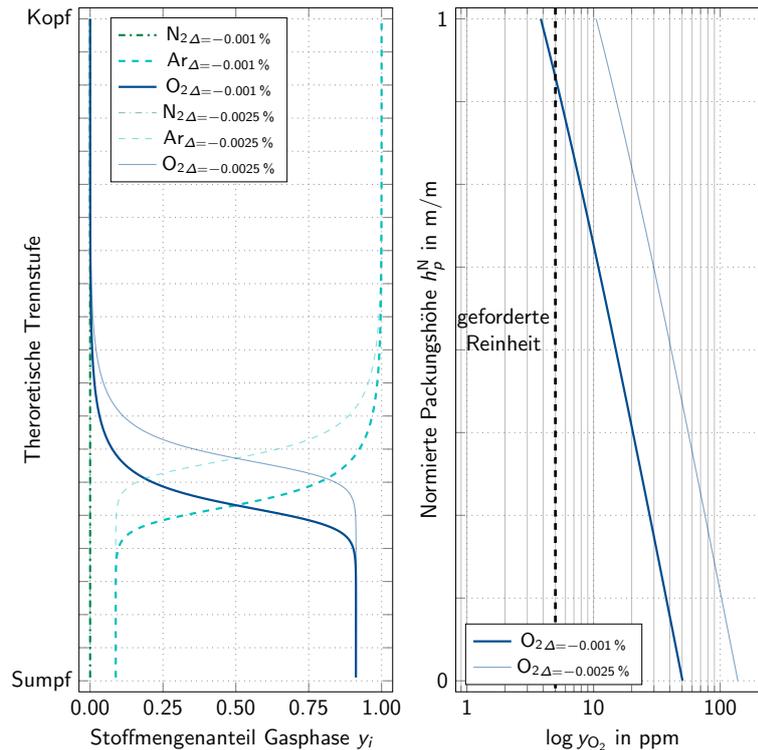


Abbildung 6.17: Variation der normierten GOX-Produktmenge – Einfluss auf das Konzentrationsprofil der Gasphase der CAC

Wie im linken Diagramm zu sehen ist, hat eine minimale Veränderung der GOX-Produktmenge enorme Auswirkungen auf die Trennwirkung der CAC, obwohl die dadurch entstehenden Abweichungen im O_2 -Stoffmengenanteil des CGO-Stroms ($|\Delta y_{O_2,CGO}| = 6.05 \cdot 10^{-5} \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$) minimal sind. Es ist zu erkennen, dass das Konzentrationsprofil der CAC für den Fall $\Delta_{-0.0025\%}$ deutlich nach oben verschoben ist. Dies hat zur Folge, dass nicht genug theoretische Trennstufen vorhanden sind, um die Reinheitsanforderungen für das Rohargon (CGAR) zu erfüllen. Durch die logarithmische Darstellung im rechten Diagramm wird sichtbar, dass selbst im obersten Packungsbett der CAC eine kontinuierliche Trennung von Ar und O_2 stattfindet.

Aus dem gasförmigen Rohargonprodukt, dem CGAR-Strom am Kopf der CAC, werden in der PAC die restlichen Spuren an N_2 entfernt. Am Kopf der PAC wird ein N_2 -reicher Strom (ATM-PAC) an die Atmosphäre abgeblasen. Im Sumpf der PAC wird das reine Ar-Produkt (LAR) in flüssiger Form gewonnen. Obwohl es sich hier um

eine vergleichsweise einfache Trennaufgabe handelt, erfordert diese weitere $n_{\text{PAC}} \approx 50$ theoretische Trennstufen, einen zusätzlichen Reinargon-Verdampfer/Kondensator am Kopf sowie einen weiteren Verdampfer am Sumpf der PAC, um eine Gasströmung durch die Kolonne zu erzeugen. Die Menge an LAR-Produkt ergibt sich über den LC am Sumpf der PAC (c.20). Das Aufdampfverhältnis der PAC wird über einen PDC geregelt. Diese Art der Regelung kann aufgrund der nahezu konstanten Zusammensetzung des CGAR-Stroms innerhalb des gültigen Betriebsbereichs der ASU verwendet werden. Dadurch kann der Einfluss der Abhängigkeit des Kolonnendruckverlusts auf den thermodynamischen Zustand des Holdups vernachlässigt und der PDC als zuverlässiger Indikator für die Gasbelastung der PAC verwendet werden.

Wie anhand der genauen Betrachtung des Ar-Systems zu sehen ist, handelt es sich bei der Gewinnung von Ar aus der Luft um eine komplexe Trennaufgabe. Nicht nur der Betrieb einer solchen ASU, sondern auch deren dynamische Simulation ist eine herausfordernde Aufgabe. Die große Anzahl an erforderlichen (theoretischen) Trennstufen ($n_{\text{tray,total}} \approx 400$) und Wärmeübertrager führen zu einem großen DAE-System. Insgesamt besteht die in dieser Studie verwendete virtuelle ASU aus 2011 Differentialgleichungen und 57325 algebraischen Gleichungen. Im nachfolgenden Abschnitt wird das SLM-Konzept präsentiert, welches es erlaubt, die Lastwechselgeschwindigkeit einer ASU mit Ar-Produktion zu erhöhen, ohne Reinheitsanforderungen zu verletzen.

6.2.2 Innovatives Flüssigkeitsmanagement – Smart Liquid Management

Bei der Anwendung des SLM-Konzepts wird die vorhandene Flüssigkeit in den Sumpfen der HPC und der CAC während eines Lastwechsellvorgangs systematisch und vorausschauend innerhalb der ASU verschoben oder gespeichert, um die Anpassung der Last schneller durchführen zu können.

Die Grundidee des SLM-Konzepts ist es, eine unerwünschte Akkumulation von überschüssiger oder einen Mangel an Flüssigkeit im MC zu verhindern, indem Flüssigkeit entweder auf alle verfügbaren Kolonnensümpfe verteilt oder von diesen verstärkt in den MC gefördert wird. Dazu werden die Sollwerte der jeweiligen LC optimal auf den entsprechenden Betriebsfall eingestellt. Die optimalen Sollwerte werden in zusätzlichen dynamischen Simulationsstudien bestimmt, indem die LC durch FC ersetzt werden und die Sollwerte der aus dem jeweiligen Kolonnensumpf austretenden Flüssigströme linear auf den entsprechenden stationären Wert des gewünschten Betriebsfalls angepasst werden. Daraus ergibt sich ein Füllstand, der für das SLM verwendet wird. Weiter sind die Sollwertänderungen der Kolonnenfüllstände gegenüber den restlichen Regelkreisen zeitlich versetzt. Der optimale zeitliche Versatz wird ebenfalls in zusätzlichen dynamischen Studien bestimmt. Hierfür wird der S-Faktor S_i verwendet, welcher bezogen auf

eine Komponente i als Indikator für die Trennleistung einer (theoretischen) Trennstufe oder einer Kolonnensektion verwendet wird. Dieser ist in Gleichung (6.1) definiert als

$$S_i = \frac{K_i}{\dot{F}/\dot{G}}, \quad (6.1)$$

wobei K_i den Gleichgewichtswert der Komponente i beschreibt und \dot{F}/\dot{G} als das Verhältnis von austretendem Flüssig- zu Gasstrom in einer Kolonnensektion oder auf einer (theoretischen) Trennstufe definiert ist. Diese Kennzahl ist auf die Überlegungen von EDMISTER (1943) zurückzuführen. Anhand des Werts des S-Faktors S_i kann abgeschätzt werden, ob eine Komponente i nach unten ($S_i < 1$) oder nach oben getrieben wird ($S_i > 1$) bzw. sich in dem betrachteten Teil der Kolonne ansammelt ($S = 1$). Daher ist diese Kennzahl geeignet, um die Auswirkungen der fluiddynamischen Verhältnisse auf die Trennleistung der LPC zu quantifizieren. Bei der Anwendung des SLM-Konzepts wird der S-Faktor S_i hauptsächlich als ein frühzeitiger Anhaltspunkt für die Veränderung der GOX-Reinheit während eines Lastwechselforgangs verwendet. Dies wird durch einen möglichst konstanten Verlauf des S-Faktors S_i in der LPC-Kolonnensektion oberhalb des MC ermöglicht, da dadurch die gewünschte Trennwirkung erreicht wird.

Im folgenden Abschnitt werden die in dieser Studie gewählten Lastwechselforgänge systematisch analysiert und der Einfluss der Anwendung des SLM-Konzepts auf die maximale Lastwechselgeschwindigkeit bewertet. Aufgrund der Vielzahl an Daten, die durch den DT zur Verfügung stehen, können tiefe Einblicke in das Anlagenverhalten während solcher Vorgänge gewonnen werden. Darüber hinaus wird der Mehrwert der Anwendung eines DT als Softsensor verdeutlicht, da für eine erfolgreiche Nutzung von SLM Größen benötigt werden, die in einer industriellen Anlage schwer oder nicht messbar sind.

6.2.3 Ergebnisse der Lastwechselanalysen

Nachfolgend werden mit Hilfe des DT zwei Lastwechselforgänge dynamisch simuliert und systematisch analysiert. Zunächst wird eine Reduktion der Last, engl.: *turn-down*, um 50 % betrachtet. Der Ausgangszustand des *turn-down* entspricht dem nominalen Betriebspunkt bei 100 % Last. Der Begriff Last bezieht sich hier auf die Menge des abgezogenen GOX-Produkts. Die Anlagenlast wird dann auf 50 % reduziert und die Sollwerte der Regelkreise entsprechend angepasst, um einen optimalen Betrieb in Unterlast zu gewährleisten. Um den Initialzustand zu erreichen, ist eine Simulation eines Anfahrvorgangs aus dem Warmen analog zu KLEIN ET AL. (2020) notwendig.

In einer zweiten Studie wird eine 50 % Lasterhöhung, engl.: *turn-up*, betrachtet. Der Anfangszustand des *turn-up* entspricht dem Endzustand des *turn-down*-Szenarios mit der Anwendung von SLM (siehe Abschnitt 6.2.2). Für beide Szenarien wird eine Lastwechselrate von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ verwendet, welche die von standardmäßigen Lastwechselforgängen einer ASU mit Ar-Abtrennung bei Weitem übersteigt. Beide Vorgänge werden dabei mit Hilfe der durch den DT verfügbaren Daten analysiert, um Engpässe zu identifizieren.

Lastreduktion – Turn-Down

Die maximale Lastwechselgeschwindigkeit des turn-down wird hauptsächlich durch die Einhaltung der Reinheit des Schwersieders (GOX) bestimmt. Durch die rapide Abnahme der Luftmenge wird die Aufdampftrate der LPC verringert, da der übertragene Wärmestrom \dot{Q}_{MC} des MC abnimmt. Ein reduzierter Gasstrom durch die Anlage hat zur Folge, dass aufgrund eines reduzierten Gasgegenstroms jeweils ein Teil der Flüssigkeit auf den (theoretischen) Trennstufen der Kolonnen abströmt und sich in den jeweiligen Kolonnensümpfen sammelt. Dieses verstärkte Herunterströmen der Flüssigkeit ist für die LPC besonders herausfordernd, da diese einen erhöhten N_2 -Anteil aus den oberen Kolonnenabschnitten auf den Ar-Feedboden spült. Dies soll verhindert werden, um einen Zusammenbruch des Ar-Systems zu vermeiden. Die Einhaltung der Reinheiten der leicht siedenden Komponenten ist während eines turn-down meist nicht problematisch. Die Anforderungen an die jeweiligen Produktreinheiten können Tabelle 6.4 entnommen werden.

Bei der Simulation des turn-down werden zwei unterschiedliche Fälle betrachtet. Im ersten Fall werden die Sollwerte der AC- (c.4a), FC- (c.1, 6-9, 13-14) und PC-Regelkreise (c.5, 12, 16, 19) linear auf ihre Werte in Unterlast verschoben. Die Sollwerte der LC-Regelkreise der Verdampfer/Kondensatoren (c.2a, 15, 17) bleiben während des gesamten Vorgangs bei einem Wert von 100 %, sodass diese durchgehend mit Flüssigkeit bedeckt sind. Darüber hinaus bleiben hier die Sollwerte der Kolonnensümpfe der LC-Regelkreise der HPC (c.3) und der beiden CACs (c.10-11) ebenfalls bei ihrem nominalen Wert von 100 %. Dieser Fall wird als kein-Flüssigkeitsmanagement, engl.: *no liquid management* (NLM), bezeichnet. Im zweiten Fall wird SLM nach Abschnitt 6.2.2 angewendet. Die Regelkreise der betrachteten ASU sind in Abbildung 6.14 dargestellt und in Tabelle 6.3 aufgelistet.

Für die Analyse des turn-down wird ein Zeitraum von 85 min betrachtet. Dabei wird die ASU in den ersten 20 min stationär am initialen Betriebspunkt betrieben. Beim Zeitpunkt $t_{\text{start}} = 20$ min beginnt der turn-down. Bei $t_{\text{end}} = 26.25$ min sind die benötigten Sollwertänderungen für einen Unterlastbetrieb abgeschlossen. Die Dauer des Lastwechsels beträgt $\Delta t = 6.25$ min, was einer Lastwechselrate von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ entspricht. Die optimalen Sollwerte für den Unterlastfall werden in einer zusätzlichen stationären Simulation, basierend auf dem Prozessdesign, berechnet. Der Begriff optimal bezieht sich hier auf die maximale Ausbeute an Ar für den entsprechenden Anlagenzustand.

Auch wenn beim Zeitpunkt $t = 85$ min noch nicht alle relevanten Parameter einen stationären Endwert erreicht haben, ist dieser Zeitraum dennoch ausreichend, um alle relevanten Aspekte der Anlagenantwort während des turn-down zu beschreiben. Für gewisse Produktkonzentrationen (z.B. CGAR respektive LAR) wird die stationäre Zusammensetzung erst nach mehreren Stunden erreicht. Jedoch ist dies keine Bedingung für einen erfolgreichen Lastwechsellvorgang. Dieser gilt als abgeschlossen, sobald die Anlage einen stationären Strömungszustand erreicht hat. Die von Natur aus langsameren Konzentrationsverschiebungen müssen nicht zwangsläufig beendet sein, solange die Änderungen marginal bleiben und die Reinheitsanforderungen nach Tabelle 6.4 erfüllt

bleiben. Die benötigte CPU-Zeit für die Simulation beider Fälle des turn-down beträgt durchschnittlich 1 h und 45 min. Nachfolgend werden erst die relevanten Sollwertänderungen präsentiert und darauffolgend die relevanten Anlagenantworten sowie der Einfluss des SLM diskutiert.

Sollwertänderungen

In Abbildung 6.18 werden die zeitlichen Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des Volumenstroms des GOX-Produkts \dot{V}_{GOX}^N (links oben), des Hauptluftstroms \dot{V}_{Luft}^N (links unten), des CGAR-Stroms \dot{V}_{CGAR}^N (rechts oben) und des CGO-Stroms \dot{V}_{CGO}^N (rechts unten) dargestellt. Die Start- und Endzeitpunkte des turn-down sind in allen folgenden Abbildungen durch gestrichelte vertikale Linien gekennzeichnet. Analog zu Abschnitt 6.1 werden auch hier alle betrachteten Parameter mit Ausnahme der Stoffmengenanteile auf ihren Wert am initialen Betriebspunkt normiert. Dies wird lediglich durch die Bildunterschrift der jeweiligen Abbildung sowie dem hochgestellten Index N in den Achsenbeschriftungen gekennzeichnet. Die in der Legende verwendete Abkürzung SP steht dabei für den Sollwert, engl.: *setpoint*.

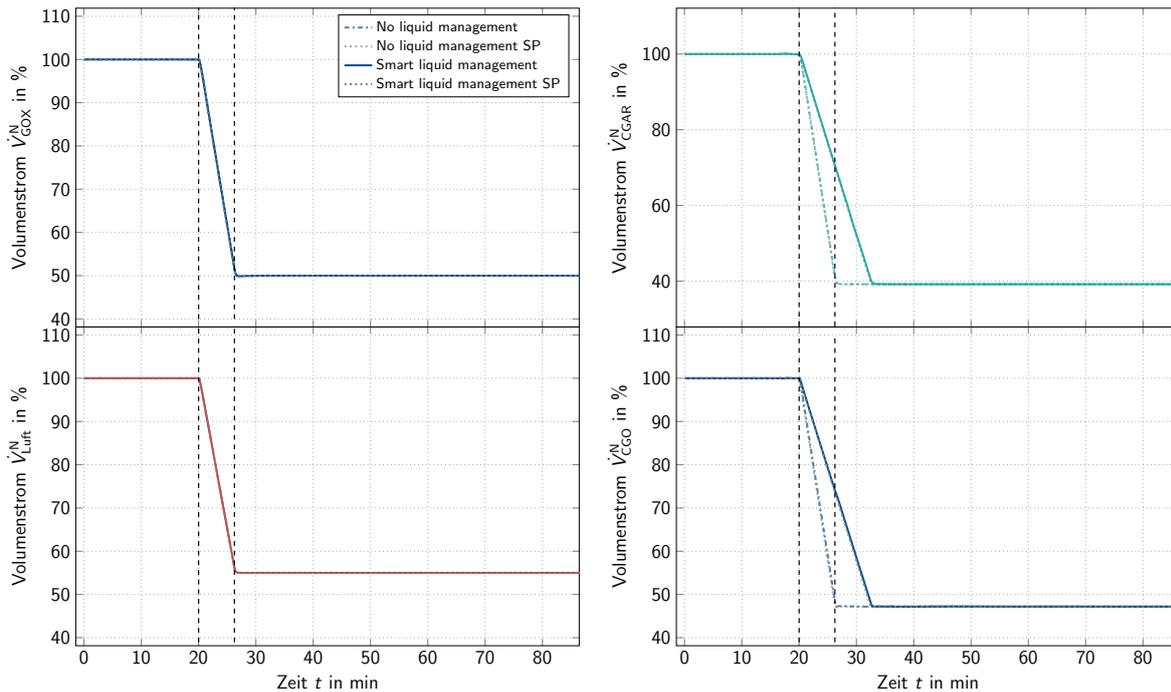


Abbildung 6.18: Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten GOX- (links oben), Luft- (links unten), CGAR- (rechts oben) und CGO-Volumenstroms (rechts unten) für den turn-down

Im Fall von NLM beginnen und enden alle dargestellten Sollwertänderungen an den gleichen Zeitpunkten. Für den SLM-Fall ist die Dauer der Sollwertänderungen für die Veränderung der Menge des CGO-Stroms und des Rohargons CGAR doppelt so lange ($\Delta t = 12.5$ min).

Abbildung 6.19 stellt die Sollwertänderungen und Istwerte für die Kolonnenfüllstände der HPC L_{HPC} und der CACs $L_{\text{CAC},1}$ und $L_{\text{CAC},2}$ über die Zeit dar.

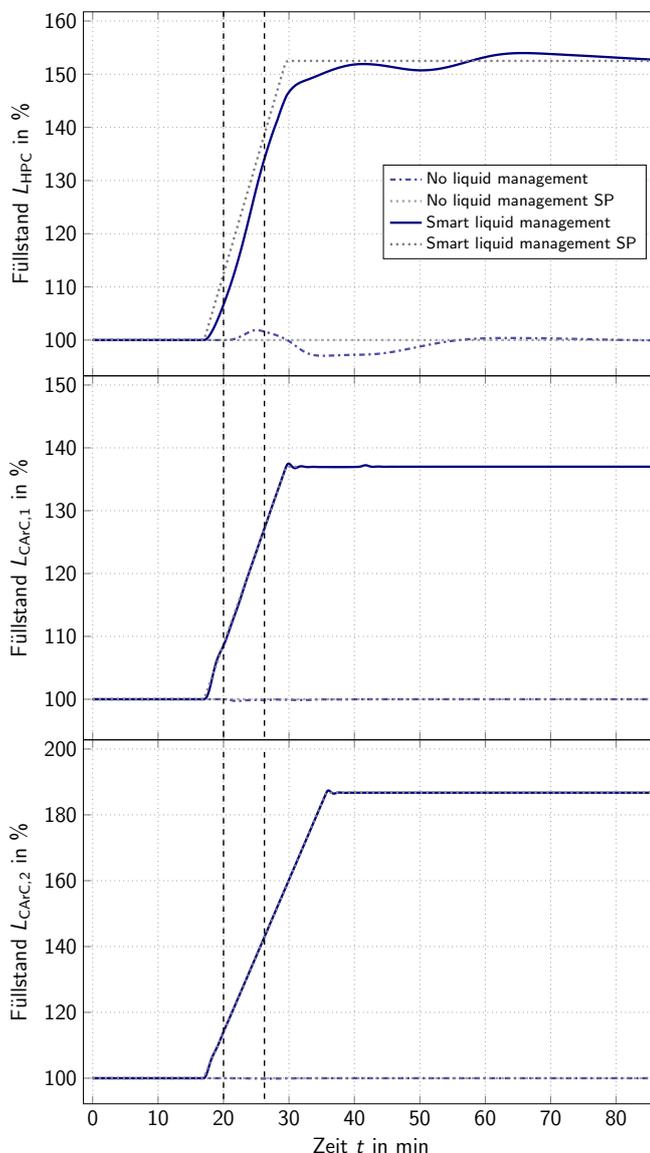


Abbildung 6.19: Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten HPC- (oben), CAC₁- (Mitte) und CAC₂-Kolonnenfüllstand (unten) für den turn-down

Beim SLM-Konzept beginnen die Sollwertänderungen der Kolonnenfüllstände bereits bei einem Zeitpunkt $t = 16.875$ min vor dem restlichen Lastwechsellvorgang. Die Sollwertänderungen für die Füllstände der HPC und CAC₁ enden bei $t = 29.375$ min ($\Delta t = 12.5$ min) und für die CAC₂ bei $t = 38.625$ min ($\Delta t = 18.75$ min). Darüber hinaus ist in Abbildung 6.19 zu erkennen, dass die Antwort des LC-Regelkreises der HPC verglichen mit den beiden anderen LC-Regelkreisen eine höhere Trägheit aufweist. Der Grund dafür liegt in den unterschiedlichen Parametrierungen der entsprechenden Regelkreise. Die Sollwertänderungen der restlichen in Abbildung 6.14 und Tabelle 6.3

aufgelisteten Regelkreise sind von geringerer Bedeutung für die weitere Analyse des turn-down. Daher werden diese nicht dargestellt.

Anlagenantwort

In diesem Abschnitt wird die relevante Anlagenantwort des turn-down-Vorgangs präsentiert. Dieser ist folgendermaßen aufgebaut: als Erstes wird das Verhalten der leicht siedenden Komponenten N_2 am Kopf der HPC und LPC sowie Ar am Kopf der CAC betrachtet. Danach liegt der Fokus auf dem unteren Abschnitt der LPC inklusive des CGO-Stroms sowie auf dem zeitlichen Verlauf der schwer siedenden Komponente O_2 im MC. Anschließend wird die Antwort des Ar-Systems präsentiert, bevor detailliert auf die Fluidodynamik der LPC eingegangen wird.

Leicht siedende Komponenten Aufgrund des verstärkten Rücklaufs während des turn-down ergeben sich unkritische Verläufe der Leichtsieder N_2 und Ar. Zu erkennen ist die an den in Abbildung 6.20 dargestellten Verläufen der O_2 -Verunreinigungen $y_{O_2,GAN}$, $y_{O_2,PGAN}$ und $y_{O_2,CGAR}$ über die Zeit.

Für alle drei Ströme wird der maximal erlaubte O_2 -Stoffmengenanteil von 5 ppm nicht überschritten. Die unterschiedlichen zeitlichen Verläufe der O_2 -Stoffmengenanteile von GAN und PGAN zwischen NLM und SLM lassen sich durch die abweichenden fluidodynamischen Verhältnisse in der HPC und LPC erklären, die durch die unterschiedliche Handhabung der überschüssigen Flüssigkeit verursacht werden.

LPC - unterer Kolonnenabschnitt In Abbildung 6.21 sind die zeitlichen Verläufe der Antworten des unteren Kolonnenabschnitts der LPC aufgetragen, welche während eines turn-down besonders kritisch sind. Das Verhalten des MC-Füllstands L_{MC} (oben) sowie des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts (unten) sind für beide Konzepte auf der linken Seite abgebildet. Die Stoffmengenanteile $y_{O_2,CGO}$ (oben) und $y_{N_2,CGO}$ (unten) des CGO-Stroms sind auf der rechten Seite dargestellt.

In den Diagrammen auf der rechten Seite in Abbildung 6.21 werden die wesentlichen Herausforderungen des turn-down hervorgehoben. Wird die überschüssige Flüssigkeit nicht in den Sümpfen der HPC und der CACs gesammelt, akkumuliert diese im MC, was im Fall von NLM zu einem maximalen Füllstand von $L_{MC,max} = 139\%$ bei $t = 41.8$ min führt, bevor dieser sich wieder langsam an den Sollwert von 100% annähert. Durch die Anwendung von SLM sinkt der MC-Füllstand L_{MC} zunächst, da die Sollwertänderungen der Füllstände (siehe Abbildung 6.19) bereits vor dem eigentlichen Lastwechsellvorgang beginnen. Die maximale Auslenkung des MC-Füllstands L_{MC} bleibt in einem Bereich von $\pm 4\%$, welche nicht sicherheitskritisch ist, da der MC zu jedem Zeitpunkt ausreichend mit Flüssigkeit bedeckt ist.

Links unten ist in Abbildung 6.21 die Antwort des GOX-Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ abgebildet. Im NLM-Fall ist ab dem Zeitpunkt $t_{start} = 20$ min eine Absenkung des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ zu sehen. Die Reinheitsanforderung für das GOX-Produkt $y_{O_2,GOX} \geq 0.995 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ wird bei $t = 25.07$ min verletzt. Bei $t = 41.42$ min nimmt der O_2 -Stoffmengenanteil mit $y_{O_2,GOX,min} = 0.985 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ seinen minimalen Wert an. Danach

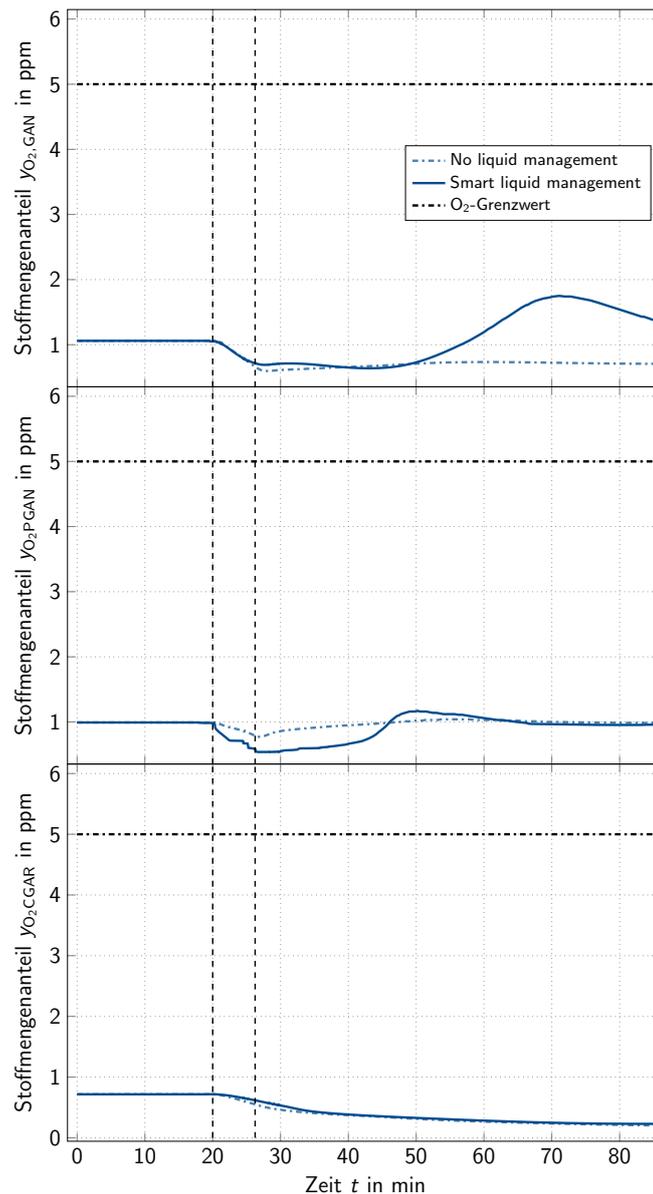


Abbildung 6.20: Zeitliche Verläufe der Antworten der O_2 -Stoffmengenanteile der Kopfprodukte der LPC (GAN, oben), der HPC (PGAN, Mitte) und der CAC (CGAR, unten) für den turn-down

steigt $y_{O_2,GOX}$ wieder an und die geforderte Reinheit wird nach $t \approx 5$ h außerhalb der dargestellten Zeitskala wieder erfüllt. Bei der Anwendung des SLM-Konzepts kann die Reinheitsanforderung an das GOX-Produkt zu jedem Zeitpunkt des turn-down erfüllt werden. Die Gründe dafür liegen in der Zusammensetzung der Sumpfflüssigkeit der CAC_1 (siehe Abbildung 6.22) sowie im Verlauf des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der Trennstufe direkt über dem MC in der LPC (siehe Abbildung 6.23). Beide Verläufe werden im Folgenden diskutiert.

Weiter werden in Abbildung 6.21 im Diagramm rechts unten die Antworten des N_2 -Stoffmengenanteils $y_{N_2,CGO}$ des CGO-Stroms dargestellt, welcher während des gesamten Anlagenbetriebs minimal gehalten werden muss. Im NLM-Fall ist nach dem

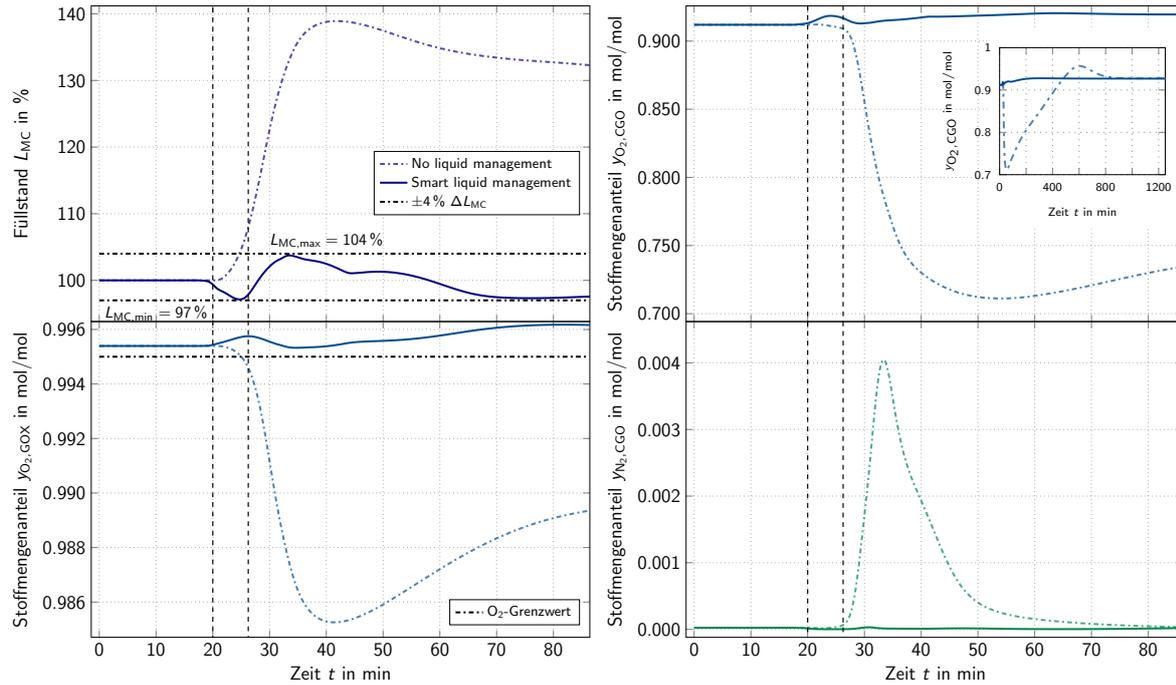


Abbildung 6.21: Zeitliche Verläufe der Antworten des MC-Füllstands (links oben), des O_2 -Stoffmengenanteils des GOX-Produkts (links unten), des O_2 - (rechts oben) und des N_2 -Stoffmengenanteils des CGO-Stroms (rechts unten) für den turn-down

Ende der Sollwertänderungen bei $t_{end} = 26.25$ min ein rapider Anstieg von $y_{N_2,CGO}$ zu erkennen. Bei einem Zeitpunkt $t = 33.53$ min ist der maximale Wert des N_2 -Stoffmengenanteils $y_{N_2,CGO} = 0.00403 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ erreicht. Dieser Anstieg wird durch die überschüssige Flüssigkeit, die während des turn-down verstärkt von den Trennstufen in Richtung Kolonnensumpf strömt, verursacht. Dadurch wird der N_2 aus dem oberen Teil verstärkt in den unteren Bereich der LPC getragen. Beim betrachteten turn-down reicht die Menge an N_2 im CGO-Strom jedoch nicht aus, um den Betrieb des Rohargon-Verdampfer/Kondensators merklich zu beeinflussen. Dadurch wird der Rücklauf der CAC nicht beeinträchtigt. Bei Anwendung von SLM bleibt der zeitliche Verlauf des N_2 -Stoffmengenanteils $y_{N_2,CGO}$ während des Lastwechsellvorgangs annähernd konstant und somit unkritisch.

Als Letztes sind im Diagramm rechts oben die Antworten des Stoffmengenanteils $y_{O_2,CGO}$ des CGO-Stroms präsentiert. Diese verlaufen generell ähnlich zum Stoffmengenanteil $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts. Weiter ist ein Ausschnitt der Verläufe über einen Zeitraum von 1350 min dargestellt. Dieser zeigt, dass für beide Fälle letztendlich ein konstanter Verlauf von $y_{O_2,CGO}$ erreicht wird. Beim SLM-Konzept dauert dies $t \approx 3.33$ h und beim NLM-Konzept $t \approx 16.67$ h. Ein konstanter Verlauf des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,CGO}$ ist gleichbedeutend mit einem stationären Anlagenzustand, da dies einen konstanten Wärmestrom \dot{Q}_{MC} , der am MC übertragen wird, erfordert. Im Fall von NLM ist, verglichen mit dem SLM-Fall, ein stärkeres Absinken von $y_{O_2,CGO}$ zu erkennen, nachdem die Sollwertänderungen des turn-down bei $t_{end} = 26.25$ min

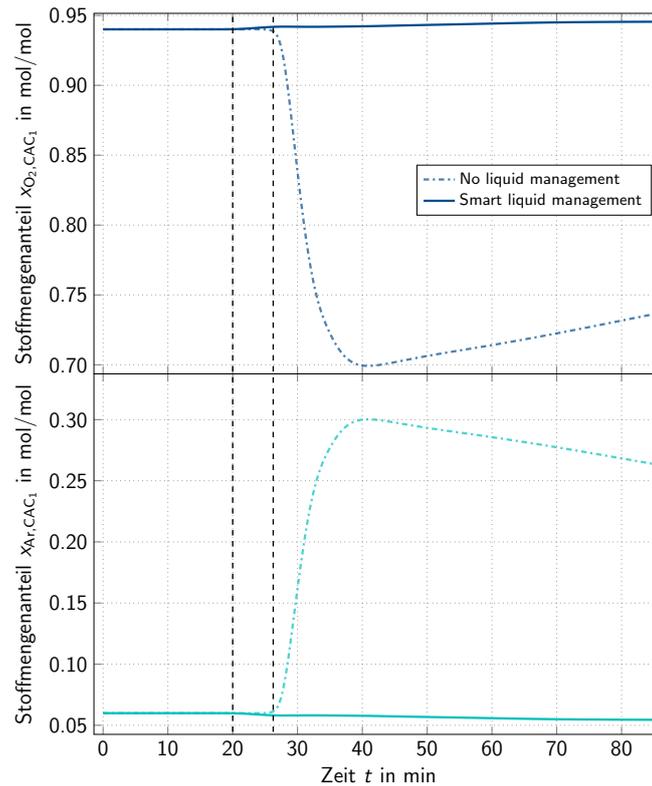


Abbildung 6.22: Zeitliche Verläufe der Antworten der Zusammensetzung Sumpfflüssigkeit der CAC_1 O_2 -Stoffmengenanteil (oben), Ar-Stoffmengenanteil (unten) für den turn-down

abgeschlossen sind. Auch hier lässt sich das minimale Absinken während der Sollwertänderungen analog zu dem des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2, GOX}$ durch den Verlauf des S-Faktors S_{Ar} (siehe Abbildung 6.23) erklären. Die signifikante Reduktion des O_2 -Anteils bis zu einem minimalen Wert von $y_{O_2, CGO, min} = 0.71$ bei $t = 54.15$ min ist auf die Änderung der Zusammensetzung der Sumpfflüssigkeit der CAC_1 über die Zeit (siehe Abbildung 6.22) zurückzuführen.

Ar-Abtrennung Als Nächstes wird die relevante Antwort der Ar-Abtrennung präsentiert. Da das Verhalten des Ar-Systems eine starke Abhängigkeit vom CGO-Strom aufweist, sind die auf der rechten Seite in Abbildung 6.21 dargestellten Diagramme in der nachfolgenden Diskussion ebenfalls von großer Wichtigkeit. Abbildung 6.22 stellt die Verläufe des O_2 -Stoffmengenanteils x_{O_2, CAC_1} (oben) sowie des Ar-Stoffmengenanteils x_{Ar, CAC_1} (unten) der Sumpfflüssigkeit der CAC_1 dar.

Für den NLM-Fall ist ein Anstieg des Ar- x_{Ar, CAC_1} auf Kosten des O_2 -Stoffmengenanteils x_{O_2, CAC_1} der Sumpfflüssigkeit der CAC_1 zu erkennen. Dieser Verlauf resultiert aus der überschüssigen Flüssigkeit, die von den Packungen herunter in die Kolonnensümpfe strömt. Dadurch sammelt sich im Sumpf der CAC_1 eine Flüssigkeit mit einem hohen Anteil an O_2 und im Sumpf der CAC_2 akkumuliert Ar. Die Ar-reiche Sumpfflüssigkeit wird im Falle von NLM in die CAC_1 gefördert, was sich mit einem zeitlichen Versatz in einem Anstieg des Ar-Stoffmengenanteils in deren Sumpf bemerkbar macht. Beim Zeitpunkt $t \approx 54.17$ min erreicht der Verlauf des Ar-Stoffmengenanteils

mit $x_{\text{Ar},\text{CAC}_1,\text{max}} = 0.289 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ sein Maximum. Diese Flüssigkeit wird dann zurück in die LPC gespeist. Die Einspeisestelle entspricht dabei dem Abzug des CGO-Stroms, was den starken Abfall des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{\text{O}_2,\text{CGO}}$ im Diagramm rechts oben nach dem Ende der Sollwertänderungen erklärt. Dieser starke Einfluss der Sumpfflüssigkeit der CAC_1 ist gegenüber dem Einfluss der Fluidodynamik, der sich bereits während des turn-down durch ein leichtes Absinken von $y_{\text{O}_2,\text{CGO}}$ bemerkbar macht, verzögert.

Bei der Anwendung von SLM wird die Ar-reiche Sumpfflüssigkeit in der CAC_2 zurückgehalten, um so eine Anreicherung von Ar im Sumpf der CAC_1 zu verhindern. Dadurch wird eine Reduktion des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{\text{O}_2,\text{CGO}}$ verhindert. Die weitere Einflussnahme auf die fluiddynamischen Verhältnisse in der LPC (siehe Abbildung 6.23) führt im Fall von SLM sogar zu einem Anstieg der Verläufe der O_2 -Stoffmengenanteile im CGO-Strom und im GOX-Produkt während des turn-down (siehe Abbildung 6.21 rechts oben und links unten).

LPC-Fluiddynamik Als Letztes wird der Fokus der Ergebnisse auf die fluiddynamischen Verhältnisse der LPC gelegt. Dazu werden in Abbildung 6.23 die zeitlichen Verläufe des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der untersten Trennstufe der LPC direkt über dem MC präsentiert. Da dieser Wert stark mit der Reinheit des GOX-Produkts korreliert, sind für die nachfolgende Diskussion auch die Verläufe des Diagramms links unten in Abbildung 6.21 relevant.

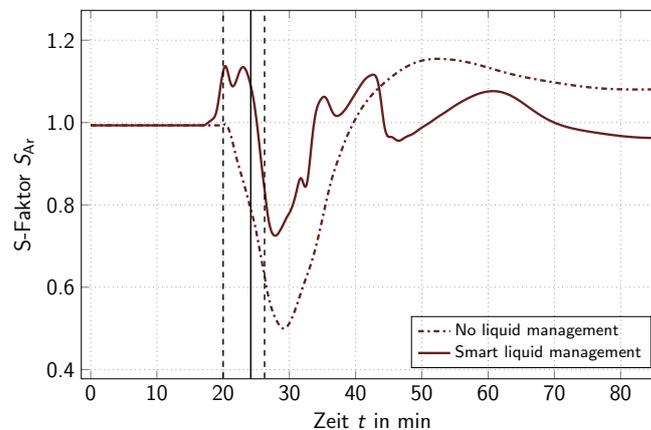


Abbildung 6.23: Zeitliche Verläufe der Antwort des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der LPC-Trennstufe oberhalb des MC für den turn-down

Die Hauptaufgabe der Kolonnensektion zwischen dem MC und dem Abzug des CGO-Stroms ist die Trennung von Ar und O_2 , weshalb der S-Faktor S_{Ar} von Ar betrachtet wird. Der Ausgangswert für beide Fälle ist minimal kleiner als eins. Das lässt darauf schließen, dass auf dieser Trennstufe im stationären Zustand eine geringfügige Trennung zwischen Ar und O_2 zu erkennen ist. Die restlichen, verschwindenden Anteile an Ar werden folglich mit nach unten in den MC getrieben. Im NLM-Fall beginnt der Verlauf des S-Faktors S_{Ar} abzunehmen, bis dieser bei $t = 29.1$ min seinen Minimalwert von $S_{\text{Ar},\text{min}} = 0.5$ erreicht. Anschließend steigt der Verlauf und überschreitet beim Zeitpunkt $t = 39.75$ min einen Wert $S_{\text{Ar}} \geq 1$.

Der Verlauf des S-Faktors S_{Ar} dient als Indikator für den O_2 -Stoffmengenanteil $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts (siehe Abbildung 6.21 links unten). Im Fall von NLM ist mit dem Beginn des turn-down eine Abnahme von $y_{O_2,GOX}$ zu sehen, hervorgerufen durch Werte des S-Faktors $S_{Ar} < 1$. Dadurch wird Ar verstärkt nach unten in Richtung des MC getrieben. Mit einem zeitlichen Versatz von in etwa 1.5 min nimmt der S-Faktor Werte von $S_{Ar} \geq 1$ (bei $t = 39.75$ min) an. Im Anschluss können das Minimum und ein darauffolgender Anstieg des Verlaufs von $y_{O_2,GOX}$ beobachtet werden, da Ar verstärkt nach oben getrieben wird ($S_{Ar} \geq 1$).

Es ist zu erkennen, dass das Verhalten des S-Faktors S_{Ar} als ein frühzeitiger Anhaltspunkt für die Veränderung der GOX-Reinheit $y_{O_2,GOX}$ verwendet werden kann. Im Fall von SLM wird durch das Aufstauen der anfallenden Flüssigkeit der Trennstufen in den jeweiligen Kolonnensümpfen der Rücklauf in die LPC entsprechend verändert. Deshalb ist bereits vor Beginn des turn-down ein Anstieg im Verlauf des S-Faktors S_{Ar} und somit im Verlauf des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts zu erkennen (siehe Abbildung 6.21 links unten). Durch die Veränderung der Fluidodynamik in der LPC ist es möglich, den minimalen Wert des S-Faktors von $S_{Ar,min} = 0.499$ auf $S_{Ar,min} = 0.725$ zu erhöhen. Dadurch können die Reinheitsanforderungen während des turn-down erfüllt werden. Nach dem Erreichen des Minimums steigt der Verlauf des S-Faktors S_{Ar} wieder an und oszilliert mit einer kleinen Amplitude um den Wert von eins, bis stationäre fluiddynamische Verhältnisse in der LPC erreicht sind.

Zusammenfassend kann in dieser Studie gezeigt werden, dass die fluiddynamischen Verhältnisse durch die Anwendung des SLM-Konzepts so beeinflusst werden können, dass die GOX-Reinheitsanforderungen während des gesamten turn-down eingehalten werden. Darüber hinaus verhindert das SLM-Konzept eine Anreicherung von Ar in der Sumpfflüssigkeit der CAC_1 (siehe Abbildung 6.20), was eine signifikante Einflussnahme auf die Zusammensetzung des CGO-Stroms verhindert. Die zeitliche Verlängerung der Sollwertänderungen des Ar-Systems (siehe Abbildung 6.18 rechts) ist eine weitere Maßnahme zur temporären Erhöhung des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$, da zwischenzeitlich eine überproportionale Menge an Mittelsieder Ar aus der LPC abgezogen wird. Dieser Einfluss fällt jedoch verhältnismäßig gering aus.

Die Absolutwerte sowie der Beginn und das Ende der Sollwertänderungen der Füllstände der HPC und der CACs (siehe Abbildung 6.19) werden in zusätzlichen dynamischen Simulationsstudien bestimmt (siehe Abschnitt 6.2.2). Eine Randbedingung für die Größenordnung der Sollwertänderungen ist deren Einfluss auf den MC-Füllstand (siehe Abbildung 6.21 rechts oben). Durch den vorgezogenen Beginn des SLM-Konzepts kommt es zu einer initialen Abnahme des MC-Füllstands L_{MC} vor dem Beginn des eigentlichen turn-down bei $t = 20$ min. Diese Abnahme muss minimal gehalten werden, sodass der MC zu jedem Zeitpunkt ausreichend mit Flüssigkeit bedeckt ist. Eine zusätzliche Voraussetzung ist, dass der Zeitpunkt des Lastwechsels bekannt sein muss. Weitere Einschränkungen sind beispielsweise die Geometrien der Sümpfe der HPC und der CACs.

Zuletzt wird für beide Fälle der Energieverbrauch der Anlage während des turn-down verglichen, welcher repräsentativ für die OPEX ist. Die wesentlichen Beiträge zur Energiebilanz der ASU gehen vom Hauptluftverdichter und der Turbine aus. Da der Beitrag der Turbine marginal ist, ist der Verlauf des Hauptluftstroms (siehe Abbildung 6.18 links oben) maßgeblich für den Energiebedarf. Da dieser für beide Fälle identisch ist, kann angenommen werden, dass die OPEX für beide Fälle annähernd identisch sind.

Mit Hilfe des SLM-Konzepts ist es möglich, eine Lastreduktion von 50 % mit einer Lastwechselrate von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ durchzuführen, ohne dass die Reinheitsanforderungen aus Tabelle 6.4 verletzt werden. Das SLM-Konzept kann ohne weiteren Aufwand auf die entsprechende Realanlage übertragen werden, was ein großer Schritt in Richtung der Erhöhung der Anlagenflexibilität ist. In der folgenden Studie wird die darauffolgende Lasterhöhung genauer untersucht.

Lasterhöhung – Turn-Up

Die wesentlichen Herausforderungen während eines schnellen turn-up sind die Kompensation des temporären Mangels an Flüssigkeit auf allen Trennstufen sowie die Einhaltung der Reinheitsanforderungen der Leichtsieder (siehe Tabelle 6.4). Beides ist auf die Erhöhung der Aufdampfraten in den Kolonnen während des Lastwechsels zurückzuführen. Diese resultiert aus der Erhöhung des Volumenstroms \dot{V}_{Luft} der Feedluft und des dadurch ansteigenden Wärmestroms \dot{Q}_{MC} des MC. Durch einen höheren Gasgegenstrom in den jeweiligen Kolonnen steigt der Strömungswiderstand, den die herunterfließende Flüssigkeit überwinden muss, an. Dies führt dazu, dass alle Sumpffüllstände inklusive der des MC L_{MC} temporär sinken. Aus zwei Gründen gilt es dies zu vermeiden. Zum einen beeinflusst ein absinkender MC-Füllstand L_{MC} den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{MC} . Zum anderen ist es aus Gründen der Prozesssicherheit wichtig, dass der MC zu jedem Zeitpunkt ausreichend mit Flüssigkeit bedeckt ist.

Im Umkehrschluss bedeutet dies, dass während eines turn-up bevorzugt eine Anreicherung des Schwersieders O_2 im GOX-Produkt stattfindet. Die Abtrennung von Ar im unteren Teil der LPC zwischen MC und dem Abzug des CGO-Stroms wird verstärkt, da ein Anstieg des internen Gasstroms sowie ein zeitgleicher Rückgang des internen Flüssigstroms den Wert des S-Faktors erhöhen (siehe Gleichung (6.1)). Beim turn-up ist die Idee des SLM-Konzepts, den Rücklauf in die LPC auf Kosten der Anreicherung des Schwersieders O_2 $y_{\text{O}_2, \text{GOX}}$ im GOX-Produkt zu erhöhen. Dadurch kann einerseits ein starkes Absinken des MC-Füllstands L_{MC} verhindert und andererseits die Einhaltung der Reinheitsanforderungen der Leichtsieder gewährleistet werden. Hierfür kann die während des turn-down zusätzlich gespeicherte Flüssigkeit in den Sumpfen der HPC und der CACs verwendet werden.

Bei der Anwendung des SLM-Konzepts sind die Startzeitpunkte sowie die Dauer der Sollwertänderungen der Kolonnenfüllstände gegenüber des restlichen Lastwechsels verändert. Darüber hinaus werden die Sollwertänderungen des Ar-Systems (c.12,14)

sowie der des LIN-Rücklaufs (c.4a) für die LPC verlängert. Im NLM-Fall werden die Sollwerte der AC- (c.4a), FC- (c.1, 6-9, 13-14) und PC-Regelkreise (c.5, 12, 16, 19) linear auf ihre Werte in Volllast verändert. Die Sollwerte der LC-Regelkreise der Verdampfer/Kondensatoren (c.2a, 15, 17) bleiben während des gesamten Vorgangs bei einem Wert von 100 %, sodass diese durchgehend mit Flüssigkeit bedeckt sind. Darüber hinaus bleiben hier die Sollwerte der Kolonnensümpfe der LC-Regelkreise der HPC (c.3) und der beiden CACs (c.10-11) ebenfalls bei ihrem nominalen Wert von 100 % (siehe Abbildung 6.14 und Tabelle 6.3).

Für die Analyse des turn-up wird ein Zeitraum von 250 min betrachtet. Ausgehend vom Endzustand des turn-down unter der Anwendung des SLM-Konzepts wird die ASU in den ersten 20 min stationär bei 50 % Last betrieben. Beim Zeitpunkt $t_{\text{start}} = 20$ min beginnen und bei $t_{\text{end}} = 26.25$ min enden die Sollwertänderungen des turn-up. Dies entspricht einer Lastwechselrate von $8 \frac{\%}{\text{min}}$. Die benötigten Sollwerte können dem Initialzustand des turn-down entnommen werden, wobei die Sollwertänderungen linear sind. Auch wenn beim Zeitpunkt $t = 250$ min noch nicht alle relevanten Parameter einen stationären Endwert erreicht haben, ist dieser Zeitraum dennoch ausreichend, um alle relevanten Aspekte der Anlagenantwort während des turn-up zu beschreiben.

Für gewisse Produktkonzentrationen (z.B. CGAR respektive LAR) wird die stationäre Zusammensetzung im NLM-Fall erst nach mehreren Tagen erreicht. Jedoch ist dies keine Bedingung für einen erfolgreichen Lastwechsellvorgang. Dieser gilt als abgeschlossen, sobald die Anlage einen stationären Strömungszustand erreicht hat. Die von Natur aus langsameren Konzentrationsverschiebungen müssen nicht zwangsläufig beendet sein, solange die Änderungen marginal bleiben und die Reinheitsanforderungen nach Tabelle 6.4 erfüllt sind. Die benötigte CPU-Zeit für die Simulation des SLM-Fall beträgt in etwa 1 h und für den NLM-Fall circa 11 h aufgrund eines N_2 -Durchbruchs, welcher im Verlauf dieser Studie genauer beschrieben wird. Nachfolgend werden zunächst die relevanten Sollwertänderungen präsentiert und darauffolgend die Anlagenantworten sowie der Einfluss des SLM diskutiert.

Sollwertänderungen

In diesem Abschnitt werden die zeitlichen Verläufe der relevanten Sollwertänderungen sowie die zugehörigen Istwerte der Regelgrößen für die Analyse des turn-up vorgestellt. Im Gegensatz zum turn-down sind hier sichtbare Abweichungen von Ist- und Sollwerten zu erkennen, die aus einem N_2 -Durchbruch resultieren. Durch den hohen Grad an Prozess- und Wärmeintegration wird dadurch der Betrieb der gesamten ASU beeinträchtigt.

In Abbildung 6.24 werden die zeitlichen Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des GOX- \dot{V}_{GOX} (links oben), Luft- \dot{V}_{Luft} (links unten), LIN- \dot{V}_{LIN} (rechts oben) und CGO-Volumenstroms \dot{V}_{CGO} (rechts unten) dargestellt. Der Verlauf des CGAR-Volumenstroms über die Zeit ist für den turn-up nicht dargestellt, da dieser analog zu dem des CGO-Volumenstroms verläuft. Die Start- und Endzeitpunkte des Lastwechsels

sind in allen folgenden Abbildungen durch gestrichelte vertikale Linien gekennzeichnet.

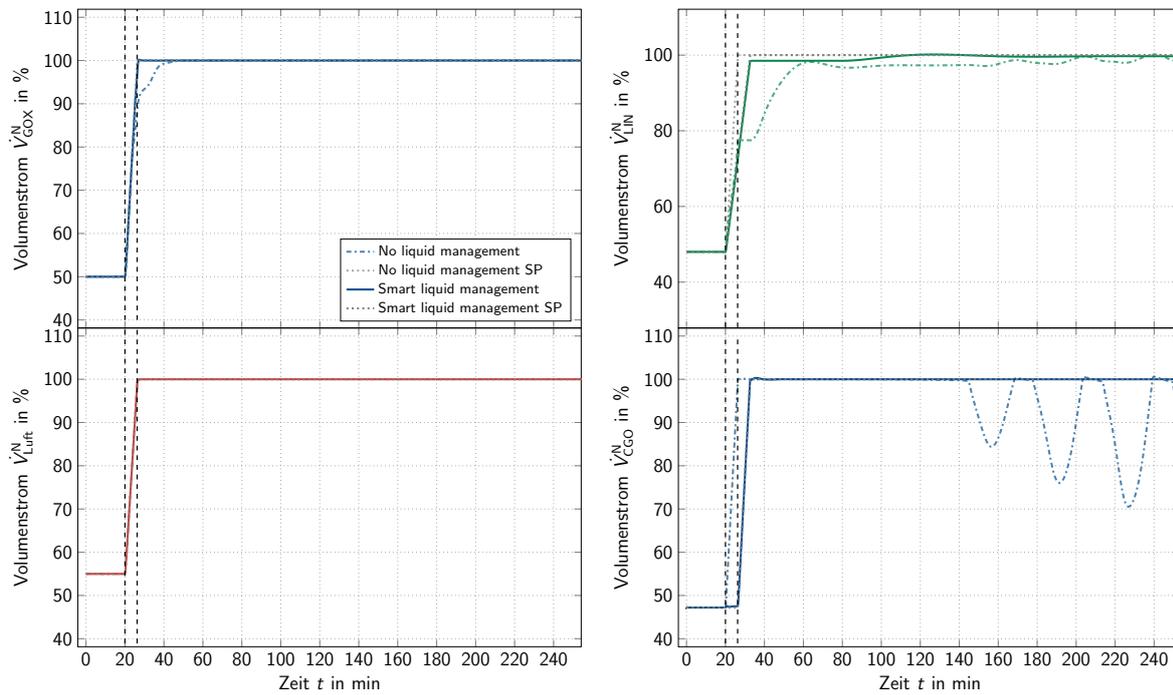


Abbildung 6.24: Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten GOX- (links oben), Luft- (links unten), LIN- (rechts oben) und CGO-Volumenstroms (rechts unten) für den turn-up

Im Fall von NLM beginnen und enden alle Sollwertänderungen analog zum turn-down zu den gleichen Zeitpunkten. Auffällig ist, dass ausgenommen vom Volumenstrom \dot{V}_{Luft} der Feedluft (links unten) die Verläufe der Istwerte deutlich von den Sollwerten abweichen. Für den Verlauf des Istwerts des LIN-Volumenstroms \dot{V}_{LIN} (siehe Abbildung 6.24 rechts oben) ist dies durch die verwendete AC-FC Trimm-Kaskade (c.4a, 4b) zu erklären. Dabei wird eine Korrektur in einem Bereich von $\varepsilon_{\text{Trimm,AC}} = 22.5\%$ um den manuellen Reglerausgang erlaubt. Im SLM-Fall sind die Abweichungen zwischen den Verläufen von Ist- und Sollwert marginal. Für den LIN-Volumenstrom \dot{V}_{LIN} ist die Verlängerung der Sollwertänderung bis zu einem Zeitpunkt von $t = 32.5$ min zu erkennen ($\Delta t = 12.5$ min).

Im SLM-Fall sind zusätzlich die Verläufe der Sollwertänderungen des Ar-Systems zeitlich versetzt (siehe Abbildung 6.24 rechts unten). Diese beginnen bei $t = 26.25$ min und enden bei $t = 32.5$ min. Die Dauer bleibt jedoch bei $\Delta t = 6.25$ min.

Bei der Anwendung von NLM kann ab Zeitpunkt $t \approx 145$ min eine Oszillation des Verlaufs des Istwerts des CGO-Volumenstroms \dot{V}_{CGO} um seinen Sollwert beobachtet werden. Dies wird durch einen N_2 -Durchbruch verursacht, welcher durch einen zu hohen N_2 -Stoffmengenanteil $y_{\text{N}_2,\text{CGO}}$ verursacht wird. Sobald ein kritischer $y_{\text{N}_2,\text{CGO}}$ -Wert überschritten wird, macht sich dies im übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{CAC} des Rohargon-Verdampfer/Kondensators bemerkbar und beeinflusst die Fluidodynamik

der CAC merklich. Durch die hohe Prozess- und Wärmeintegration einer ASU mit Ar-Abtrennung sind folglich Oszillationen im gesamten Anlagenverhalten erkennbar.

Weiter ist im NLM-Fall zu sehen, dass der Istwert des Volumenstroms \dot{V}_{GOX} des GOX-Produkts zwischen $t \approx 23.33$ min und $t \approx 41.67$ min von seinem Sollwert abweicht, was auf die Größe des GOX-Ventils und den erhöhten Bedarf an Turbinenluft (siehe Abbildung 6.25 rechts oben), die zur Regelung des MC-Füllstands benötigt wird, zurückzuführen ist. Der erhöhte Volumenstrom $\dot{V}_{\text{Luft,turb}}$ durch die Turbine hat einen maßgeblichen Einfluss auf das Verhalten der Anlage während und nach dem turn-up-Vorgang.

Abbildung 6.25 stellt die Sollwertänderungen sowie die Istwerte der Verläufe des LPC-Kopfdrucks $p_{\text{top,LPC}}$ (links oben), des Volumenstroms $\dot{V}_{\text{Luft,turb}}$ der Luft durch die Turbine (rechts oben) sowie die Verläufe der Antworten des MC-Drucks p_{MC} (links unten) und des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} des MC (rechts unten) für beide Fälle dar. Die Verläufe dienen hauptsächlich dazu, die Abweichungen zwischen Ist- und Sollwerte für den NLM-Fall in Abbildung 6.24 zu erklären.

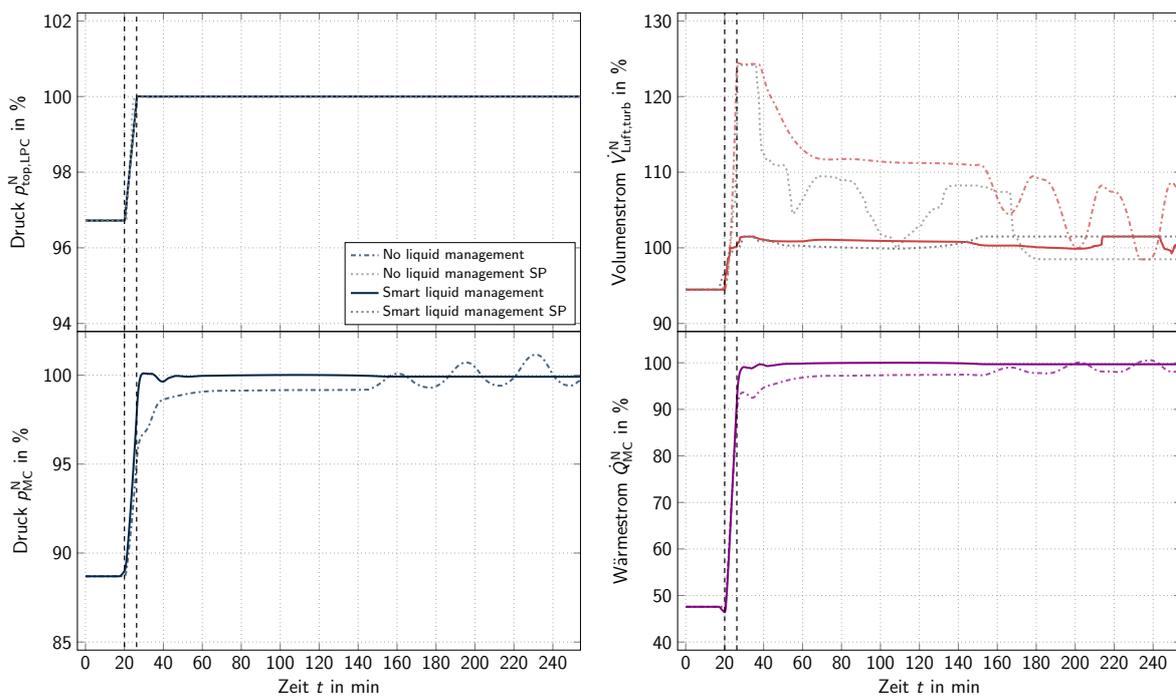


Abbildung 6.25: Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten LPC-Kopfdrucks (links oben) und Turbinenluftvolumenstroms (rechts oben) sowie der Antworten des normierten MC-Drucks (links unten) und normierten MC-Wärmestroms (rechts unten) für den turn-up

Wie auch für die Regelung des LIN-Stroms wird für den MC-Füllstand, der über die Luftmenge durch die Turbine geregelt wird (*c2a*, *2b*), eine Trimm-Kaskadenregelung verwendet. Für beide Konzepte, NLM und SLM, werden allerdings unterschiedliche Bereiche für eine Korrektur um den manuellen Reglerausgang vorgegeben. Durch das starke Absinken des MC-Füllstands L_{MC} im NLM-Fall (siehe Abbildung 6.28

links oben) ist ein größerer Bedarf an Luft durch die Turbine vorhanden. Daher sind unterschiedliche Maximalwerte für Sollwerte des Volumenstroms durch die Turbine $\dot{V}_{\text{Luft,turb,max}} = 124.4\%$ (NLM) und $\dot{V}_{\text{Luft,turb,max}} = 101.5\%$ (SLM) zu erkennen.

Der Volumenstrom \dot{V}_{Luft} ist für beide Fälle identisch. Daher werden der HPC unterschiedliche Luftmengen zugeführt, resultierend in unterschiedlichen Verläufen des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} des MC (siehe Abbildung 6.25 rechts unten). Ein höherer Volumenstrom an Luft durch die Turbine resultiert in einer höheren Gasbelastung im oberen Teil und einer geringen Gasbelastung im unteren Teil der LPC. Dies führt zu einem unterschiedlichen Verlauf des Druckniveaus p_{MC} des MC für den NLM-Fall, obwohl die Verläufe der Sollwertänderungen sowie die der Istwerte für den LPC-Kopfdruck $p_{\text{top,LPC}}$ in beiden Fällen identisch sind. Bei der Anwendung von NLM ist der Verlauf des MC-Druckniveaus p_{MC} bis zum Zeitpunkt $t \approx 145$ min unterhalb des SLM-Niveaus. Nachfolgend ist ein Anstieg gefolgt von einem oszillierenden Verlauf des MC-Druckniveaus p_{MC} um den SLM-Wert zu beobachten. Beim NLM-Konzept ist generell ein langsamerer Anstieg des Verlaufs des MC-Drucks p_{MC} zu erkennen. Diese erhöhte Trägheit führt dazu, dass bei der Anwendung des NLM-Konzepts der Verlauf des GOX-Volumenstroms \dot{V}_{GOX} verglichen mit dem SLM-Fall langsamer ansteigt, obwohl das GOX-Ventil bereits komplett geöffnet ist (siehe Abbildung 6.24 links oben).

Weiter sind in Abbildung 6.26 die Verläufe der Sollwertänderungen und Istwerte der Füllstände L_{HPC} , L_{CAC_1} und L_{CAC_2} der HPC und der CACs dargestellt.

Auch für den turn-up beginnen die Sollwertänderungen der Füllstände vor dem restlichen Lastwechsellvorgang bei einem Zeitpunkt von $t = 16.875$ min. In diesem Fall enden alle drei Sollwertänderungen bei unterschiedlichen Zeitpunkten. Für die HPC ist der finale Wert bei $t = 26.25$ min, für die CAC_1 bei $t = 32.5$ min und für die CAC_2 bei $t = 38.75$ min erreicht. Auffällig ist, dass die Endwerte der Füllstände für die HPC mit $L_{\text{HPC,Ende}} = 118\%$ sowie der CAC_2 mit $L_{\text{CAC}_2,\text{end}} = 88\%$ nicht bei 100% liegen und die optimalen Sollwertänderungen der Füllstände für turn-down und turn-up somit asymmetrisch sind. Diese Erkenntnis wird jedoch im Rahmen dieser Dissertation nicht genauer untersucht.

Anlagenantwort

In diesem Abschnitt wird die relevante Anlagenantwort des turn-up-Vorgangs vorgestellt. Dieser ist folgendermaßen aufgebaut: als Erstes wird das Verhalten der leicht siedenden Komponenten N_2 am Kopf der HPC und LPC sowie Ar am Kopf der CAC betrachtet. Danach liegt der Fokus auf dem unteren Abschnitt der LPC inklusive des CGO-Stroms sowie des zeitlichen Verlaufs der schwer siedenden Komponente O_2 im MC. Im Anschluss wird die Antwort des Ar-Systems diskutiert, bevor detailliert auf die Fluidodynamik der LPC eingegangen wird.

Leicht siedende Komponenten Eine wesentliche Herausforderung während eines turn-up ist die Einhaltung der Reinheitsanforderungen für die leicht siedenden Komponenten in den Kopfproduktströmen GAN, PGAN und CGAR, da der Gasstrom durch die

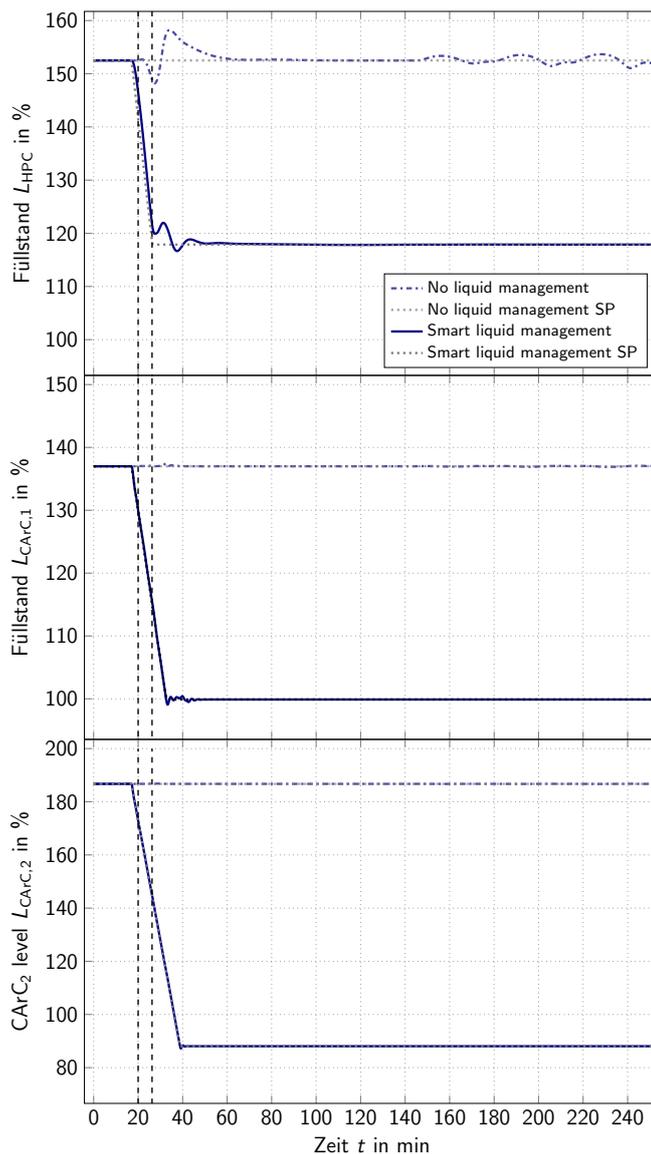


Abbildung 6.26: Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten HPC- (oben), CAC₁- (Mitte) und CAC₂-Kolonnenfüllstand (unten) für den turn-up

Kolonnen vorübergehend erhöht und der Rücklauf reduziert wird. In Abbildung 6.27 sind die zeitlichen Verläufe der O₂-Stoffmengenanteile $y_{O_2,GAN}$, $y_{O_2,PGAN}$ und $y_{O_2,CGAR}$ der GAN-, PGAN- und CGAR-Ströme dargestellt.

Für den NLM-Fall werden die Reinheitsanforderungen nach Tabelle 6.4 für den GAN- und CGAR-Strom während des Lastwechsels verletzt. Die Anforderungen an die PGAN-Reinheit kann jedoch durchgehend erfüllt werden. Für den SLM-Fall wird lediglich der O₂-Grenzwert für den GAN-Strom während eines sehr kurzen Zeitraums minimal nicht eingehalten.

Die Verläufe der Stoffmengenanteile für $y_{O_2,GAN}$ und $y_{O_2,PGAN}$ resultieren aus dem Verhalten des LIN-Volumenstroms \dot{V}_{LIN} (siehe Abbildung 6.24 rechts oben). Im NLM-Fall steigt der Verlauf des LIN-Volumenstroms \dot{V}_{LIN} langsamer an, was zu einer höheren

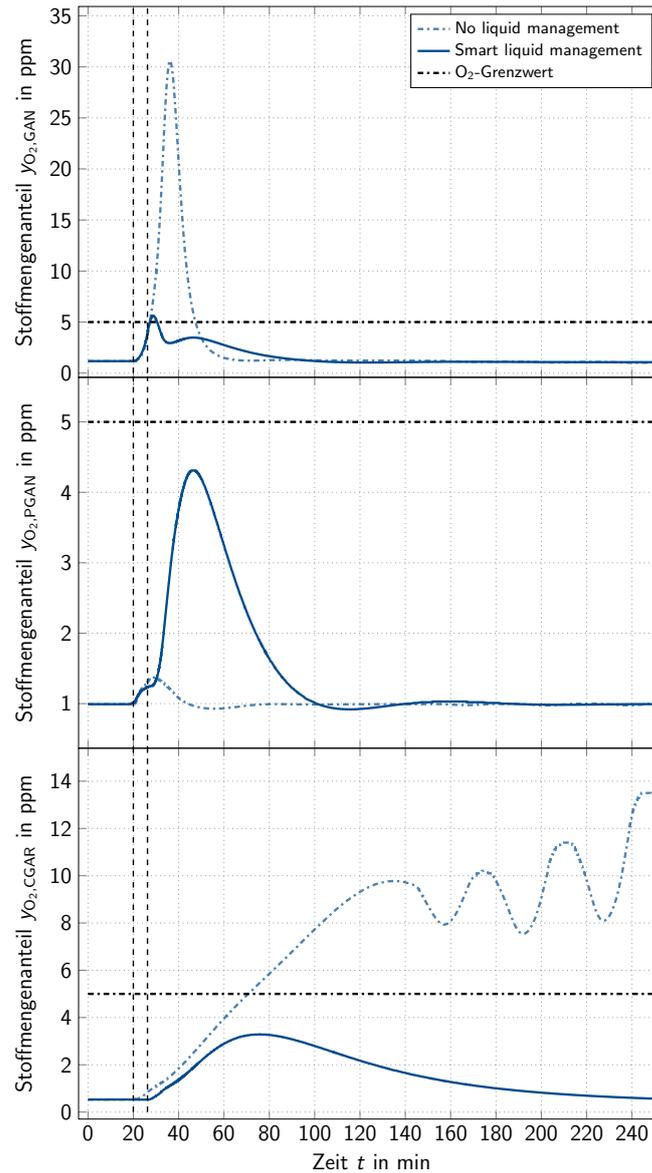


Abbildung 6.27: Zeitliche Verläufe der Antworten der O_2 -Stoffmengenanteile der Kopfprodukte der LPC (GAN, oben), der HPC (PGAN, Mitte) und der CAC (CGAR, unten) für den turn-up

PGAN-Reinheit $y_{O_2,PGAN}$ führt. Allerdings ist dies lediglich auf Kosten der GAN-Reinheit $y_{O_2,GAN}$ zu erreichen. Im SLM-Fall führt die Verzögerung der Sollwertänderung des LIN-Volumenstroms zu einer gleichmäßigeren Verteilung des Rücklaufs auf HPC und LPC. Dadurch können bis auf die kurzzeitige Verletzung der GAN-Reinheit zwischen $t = 27.28$ min und $t = 30.52$ min mit einem maximalen Wert von $y_{O_2,GAN,max} = 5.61$ ppm die geforderten Reinheiten $y_{O_2,PGAN}$ und $y_{O_2,GAN}$ der Kopfprodukte der HPC und LPC während des turn-up eingehalten werden.

Hier wird deutlich, dass die Verbesserung des Betriebs mittels SLM durch das Anlagendesign limitiert ist. Eine Lösung wäre hier beispielsweise die Anbringung eines zusätzlichen LIN-Puffertanks zwischen HPC und LPC, um den zusätzlichen Bedarf an Rücklauf für die LPC zu decken, ohne den der HPC zu reduzieren.

Bezüglich der Anforderungen an den O_2 -Stoffmengenanteil $y_{O_2,CGAR}$ des CGAR-Stroms wird die geforderte Reinheit im NLM-Fall ab dem Zeitpunkt $t = 70.25$ min nicht mehr erreicht. Aufgrund des N_2 -Durchbruchs beginnt der Verlauf von $y_{O_2,CGAR}$ ab $t \approx 145$ min zu oszillieren. Im SLM-Fall kann der O_2 -Grenzwert für den CGAR-Strom während des gesamten Lastwechselforgangs eingehalten werden. Die verlangsamteten Sollwertänderungen des Ar-Systems (siehe Abbildung 6.24 links unten) sind eine zusätzliche Maßnahme des SLM-Konzepts, diesen Grenzwert einzuhalten.

LPC - unterer Kolonnenabschnitt

Als Nächstes werden in Abbildung 6.28 auf der linken Seite die zeitlichen Verläufe der Antworten des MC-Füllstands L_{MC} (oben) und des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts (unten) sowie auf der rechten Seite der Stoffmengenanteile $y_{O_2,CGO}$ (oben) und $y_{N_2,CGO}$ (unten) des CGO-Stroms dargestellt.

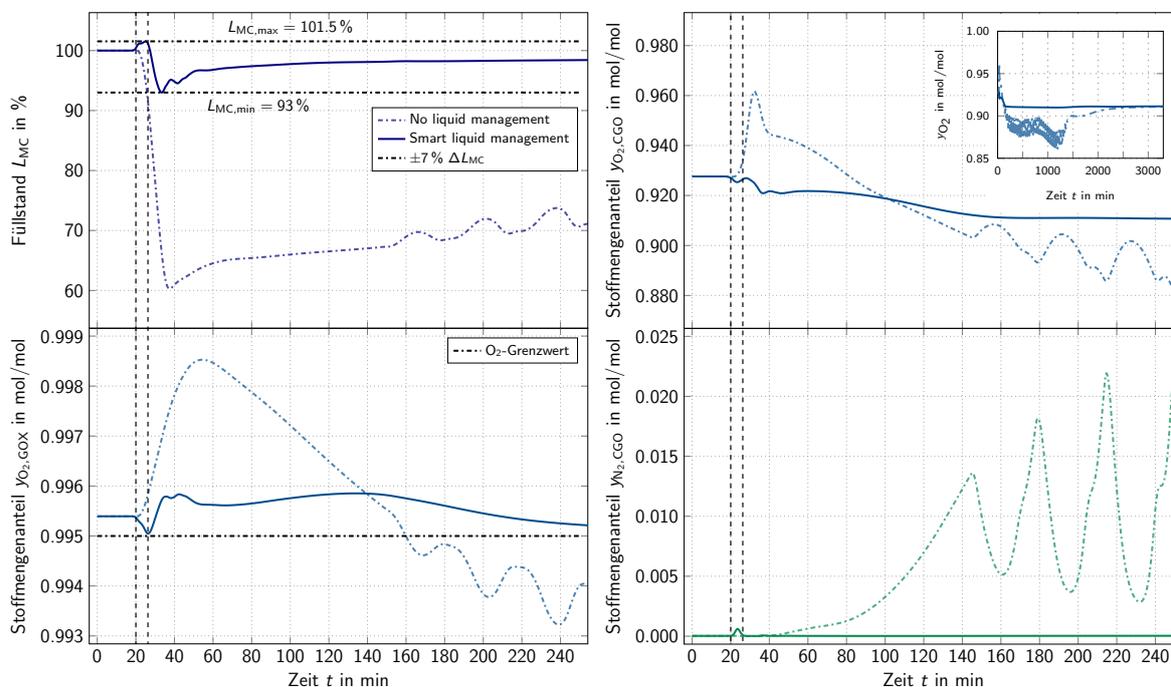


Abbildung 6.28: Zeitliche Verläufe der Antworten des MC-Füllstands (links oben), des O_2 -Stoffmengenanteils des GOX-Produkts (links unten), des O_2 - (rechts oben) und des N_2 -Stoffmengenanteils des CGO-Stroms (rechts unten) für den turn-up

Im Diagramm links oben sind in Abbildung 6.28 die Folgen des schnellen Anstiegs der Aufdampfrate in der LPC sowie die Verlangsamung der internen Flüssigkeitsströmungen im Verlauf des MC-Füllstands L_{MC} zu erkennen. Im NLM-Fall ist ein unverzügliches Absinken des Verlaufs des MC-Füllstands L_{MC} bei Beginn des turn-up zu erkennen ($t_{\text{start}} = 20$ min). Das Minimum $L_{MC,\text{min}} = 60.3\%$ ist bei $t = 37.55$ min erreicht. Danach nähert sich der Verlauf des MC-Füllstands L_{MC} langsam dem Sollwert von 100% an. Dieses signifikante Absinken des MC-Füllstands L_{MC} benötigt eine zusätzliche Menge an Luft $\dot{V}_{\text{Luft,turb}}$, welche durch die Turbine geleitet wird (siehe Abbildung 6.25 rechts oben), was der Auslöser für den späteren N_2 -Durchbruch ist.

Wie auch bei allen anderen betrachteten Parametern im NLM-Fall sind ab $t \approx 145$ min Oszillationen im Verlauf zu sehen. Darüber hinaus ist ein Absinken des MC-Füllstands L_{MC} im echten Anlagenbetrieb aus sicherheitstechnischen Gründen sehr bedenklich, da der benötigte Grad der Benetzung nicht notwendigerweise gegeben ist. Dadurch wird die Bedeutung von *in silico* Studien mittels DT für Analysezwecke von sicherheitsrelevanten Betriebsszenarien weiter hervorgehoben. Für den SLM-Fall ist zunächst ein Anstieg des Verlaufs des MC-Füllstands L_{MC} zu erkennen, da die Sollwertänderungen der Kolonnenfüllstände der HPC und der CACs (siehe Abbildung 6.26) bereits vor dem eigentlichen turn-up beginnen. Die Änderungen des Verlaufs des MC-Füllstands bewegen sich in einem Bereich von $+1.05\%$ bis -7% .

Die Verläufe des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ sind in Abbildung 6.28 im Diagramm unten links dargestellt. Im NLM-Fall steigt der Verlauf von $y_{O_2,GOX}$ zu Beginn des turn-up an bis ein Maximum von $y_{O_2,GOX,max} = 0.9985 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ bei $t = 54.25$ min erreicht wird. Danach sinkt der Verlauf des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ aufgrund des erhöhten Volumenstroms $\dot{V}_{Luft,turb}$ der Turbinenluft (siehe Abbildung 6.25 rechts oben). Ab dem Zeitpunkt $t \approx 145$ min ist auch hier ein oszillierendes Verhalten zu erkennen. Bei $t = 159.93$ min wird die Reinheitsanforderung von $0.995 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ verletzt. Mit einer Annäherung des Verlaufs des MC-Füllstands L_{MC} an seinen Sollwert reduziert sich der Volumenstrom $\dot{V}_{Luft,turb}$ durch die Turbine. Dies führt wiederum dazu, dass der O_2 -Stoffmengenanteil $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts seinen gewünschten Wert erreicht. Mit einer Dauer von ≈ 1.75 d ist das Erreichen des Sollwerts nicht mehr in der Zeitskala der präsentierten Diagramme abgebildet.

Durch die Anwendung von SLM kann die Reinheitsanforderung an das GOX-Produkt durchgehend erfüllt werden. Dennoch ist ein anfängliches Absinken von $y_{O_2,GOX}$ bei $t = 16.875$ min zu erkennen. Auf Kosten der GOX-Reinheit kann beim turn-up durch Anwendung von SLM ein rapides Absinken des MC-Füllstands L_{MC} verhindert werden. Auch hier wird der S-Faktor S_{Ar} dargestellt in Abbildung 6.30 dazu verwendet, die Sollwertänderungen der Füllstände der HPC und CACs zu bestimmen, um die bestmögliche Abwägung zwischen $y_{O_2,GOX}$ und L_{MC} für den turn-up zu finden. Bei $t \approx 150$ min ist ein Absinken des Verlaufs von $y_{O_2,GOX}$ zu erkennen, was durch den Verlauf der Turbinenmenge $\dot{V}_{Luft,turb}$ hervorgerufen wird (siehe Abbildung 6.25 rechts oben). Dieser bewegt sich ebenfalls über dem Zielwert von 100% bis der gewünschte Füllstand von $L_{MC} = 100\%$ erreicht wird.

Bei der Anwendung des SLM-Konzepts wird die Vorgabe von $y_{O_2,GOX} \geq 0.995 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ zu jedem Zeitpunkt erfüllt. Daher ist ein Ziel des SLM, während des turn-up die maximal mögliche Menge an Flüssigkeit zu finden, die während des Vorgangs der LPC zusätzlich zugeführt werden kann, ohne die Reinheitsanforderung des GOX-Produkts zu verletzen und somit ein starkes Absinken des MC-Füllstands L_{MC} zu verhindern. Dies verhindert einen N_2 -Durchbruch, welcher durch eine erhöhte Turbinenmenge $\dot{V}_{Luft,turb}$ über einen langen Zeitraum hervorgerufen wird.

Der Verlauf des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,CGO}$ des CGO-Stroms (rechts oben) verhält sich für beide Fälle ähnlich zu dem des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts. Analog zum turn-down ist in diesem Diagramm ein Ausschnitt abgebildet, welcher die zeitlichen Verläufe von $y_{O_2,CGO}$ über einen Zeitraum von 3300 min darstellt. Es ist zu erkennen, dass im SLM-Fall nach $t \approx 250$ min ein konstanter Verlauf erreicht wird. Im NLM-Fall endet das oszillierende Verhalten nach $t \approx 1400$ min (≈ 1 d). Nach $t \approx 2520$ min (≈ 1.75 d) konvergiert der Verlauf von $y_{O_2,CGO}$ gegen den SLM-Wert. Zuvor kann für das NLM-Konzept bei $t = 32.2$ min ein Maximum von $y_{O_2,CGO,max} = 0.962 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ beobachtet werden. Anschließend ist ein schnelles Absinken des Verlaufs zu sehen, welches bei $t \approx 41.27$ min abflacht. Nach $t = 145$ min sind aufgrund des N_2 -Durchbruchs Oszillationen im Verlauf zu erkennen. Das rapide Absinken von $y_{O_2,CGO}$ ist eine Konsequenz des Anstiegs der Aufdampfrate der LPC. Im SLM-Fall ist ein leichtes stetiges Absinken von $y_{O_2,CGO}$ während des turn-up zu erkennen. Dieser Verlauf ist ein Resultat der unterschiedlichen O_2 -Stoffmengenanteile des CGAR-Stroms in Unterlast ($y_{O_2,CGAR,50\%} = 0.53$ ppm) und im initialen Betriebspunkt ($y_{O_2,CGAR,100\%} = 0.717$ ppm). Ein höherer O_2 -Anteil im CGAR-Strom führt zu einem geringeren O_2 -Stoffmengenanteil $y_{O_2,CGO}$ im CGO-Strom.

Im Diagramm unten rechts in Abbildung 6.28 sind die zeitlichen Verläufe des N_2 -Stoffmengenanteils $y_{N_2,CGO}$ aufgetragen. Für den SLM-Fall ist lediglich ein geringer Anstieg des N_2 -Stoffmengenanteils im CGO-Strom mit einem Maximum von $y_{N_2,CGO,max} = 6.1 \cdot 10^{-4} \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ bei $t = 23.62$ min zu sehen. Dieser maximale N_2 -Stoffmengenanteil $y_{N_2,CGO}$ ist akzeptabel, da dadurch der übertragene Wärmestrom \dot{Q}_{CAC} (siehe Abbildung 6.29 unten) nicht beeinflusst wird. Im NLM-Fall wird der N_2 -Durchbruch durch einen zu hohen N_2 -Stoffmengenanteil $y_{N_2,CGO}$ hervorgerufen, der den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{CAC} (siehe Abbildung 6.29 unten) und, durch den hohen Grad an Prozess- und Wärmeintegration, das gesamte Anlagenverhalten beeinflusst.

Ar-Abtrennung

Das oszillierende Verhalten kann mit Hilfe der in Abbildung 6.29 dargestellten Verläufe des N_2 -Stoffmengenanteils $y_{N_2,CGAR}$ des CGAR-Stroms (oben) und des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{CAC} des Rohargon-Verdampfer/Kondensators (unten) erläutert werden. Dieses ist ein Resultat aus dem N_2 -Stoffmengenanteil $y_{N_2,CGO}$ im CGO-Strom.

Im NLM-Fall kann das erste lokale Maximum von $y_{N_2,CGO,max}$ bei $t \approx 145.83$ min beobachtet werden (siehe Abbildung 6.28 rechts unten). Mit einer Verzögerung von $\Delta t \approx 12.2$ min ist der N_2 am Kopf der CAC angekommen. Dies führt zum ersten lokalen Maximum von $y_{N_2,CGAR,max}$ bei $t \approx 164.03$ min. Oberhalb eines N_2 -Stoffmengenanteils von $y_{N_2,CGAR,krit} \approx 0.16 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ führt eine weitere Anreicherung von N_2 zu einer Reduktion von \dot{Q}_{CAC} , da durch den N_2 -Stoffmengenanteil im CGAR die Taupunkttemperatur $T_{dew,CGAR}$ merklich verringert wird. Dies führt zu einer Abnahme des Rücklaufs der CAC. Der Rückgang der Kondensation am Rohargon-Verdampfer/Kondensator führt zu einer Reduktion des Druckgradienten in der CAC und somit zu einer Verringerung des CGO-Stroms. Da der CGO-Volumenstrom \dot{V}_{CGO} einem FC-Regelkreis unterliegt, wird der

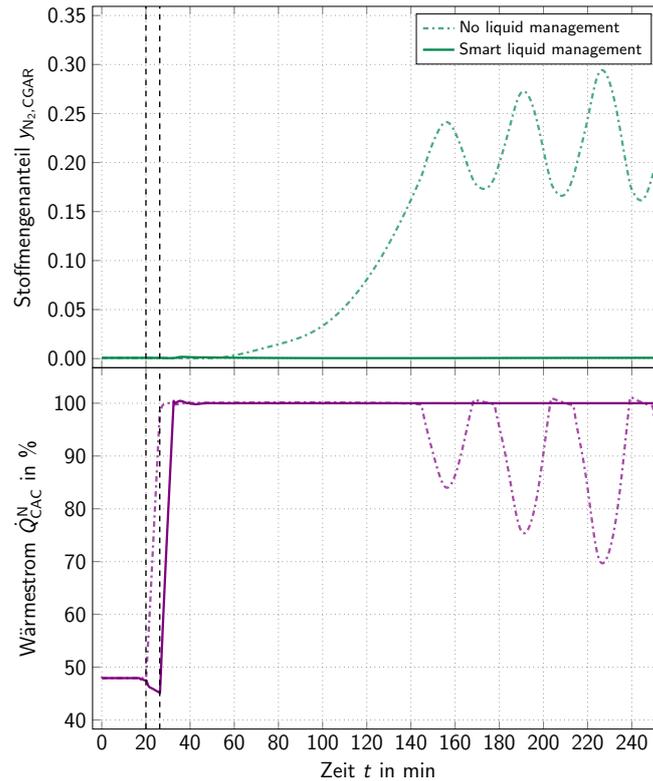


Abbildung 6.29: Zeitliche Verläufe der Antworten des normierten N_2 -Stoffmengenanteils des CGAR-Stroms (oben) und des normierten Wärmestroms des Rohargon-Verdampfer/Kondensators (unten) für den turn-up

Druck auf der Verdampferseite des Rohargon-Verdampfer/Kondensators so angepasst, dass sich der Wärmestrom \dot{Q}_{CAC} entsprechend der neuen Bedingungen einstellt.

Dadurch wird der Rücklauf wieder angepasst. Die kurzzeitige Abnahme des Rücklaufs der CAC hat jedoch Einfluss auf den gesamten Anlagenzustand, da dieser zurück in die LPC gespeist wird und dadurch die fluiddynamischen Verhältnisse im unteren Kolonnenabschnitt der LPC beeinflusst. Eine Abnahme des Rücklaufs führt somit zu einem Absinken des MC-Füllstands (siehe Abbildung 6.28 links oben) und folglich zu einer Reduktion des MC-Wärmestroms \dot{Q}_{MC} (siehe Abbildung 6.25 rechts unten). Dies beeinflusst wiederum den Verlauf des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2, GOX}$ im GOX-Produkt (siehe Abbildung 6.28 links unten), was sich zurück auf die Zusammensetzung des CGO-Stroms auswirkt und somit die Oszillationen verstärkt.

Mit einem ansteigenden Verlauf des MC-Füllstands L_{MC} (siehe Abbildung 6.28 links oben) nimmt der Volumenstrom $\dot{V}_{Luft, turb}$ der Luft durch die Turbine kontinuierlich ab und konvergiert gegen seinen nominellen Wert von 100%. Die Endwerte werden beim NLM-Konzept beim Zeitpunkt $t \approx 1$ d erreicht. Dabei nimmt während des Füllstandaufbaus die Aufdampfrate der LPC stetig zu mit der Folge, dass dadurch der O_2 -Stoffmengenanteil $y_{O_2, GOX}$ des GOX-Produkts ansteigt. Dies führt zu einer Abnahme des N_2 -Stoffmengenanteils $y_{N_2, CGO}$ im CGO-Strom. Ist der kritische Wert unterschritten, wird auch die übertragene Wärmemenge \dot{Q}_{CAC} nicht weiter beeinflusst.

Die Anwendung von NLM resultiert für diesen turn-up in einem Produktionsausfall von ≈ 1 d. Durch manuelle Eingriffe der Anlagenbetreiber kann dieser Zeitraum reduziert werden, jedoch hat ein N_2 -Durchbruch immer einen Produktionsausfall über einen längeren Zeitraum zur Folge. Daher ist die Verwendung des SLM-Konzepts notwendig, um einen erfolgreichen 50 %-turn-up mit einer Lastwechselrate von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ durchführen zu können.

LPC-Fluiddynamik Als Letztes sind in Abbildung 6.30 die zeitlichen Verläufe des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der Trennstufe oberhalb des MC dargestellt.

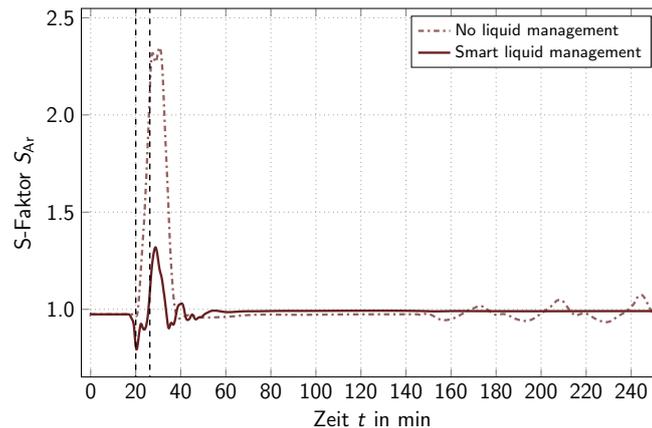


Abbildung 6.30: Zeitliche Verläufe der Antwort des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der LPC-Trennstufe oberhalb des MC für den turn-up

Im NLM-Fall nimmt der Verlauf von S_{Ar} zwischenzeitlich Werte an, die mehr als dem Doppelten seines initialen Werts entsprechen. Dies führt zu einem starken Anstieg des O_2 -Stoffmengenanteils $y_{O_2,GOX}$ des GOX-Produkts zuungunsten des MC-Füllstands L_{MC} (siehe Abbildung 6.28 links). Beim SLM-Konzept führen die Sollwertänderungen der Füllstände der HPC und der CACs (siehe Abbildung 6.26) zu einer entsprechenden Verringerung des Maximalwerts des S-Faktors S_{Ar} während des turn-up. Da die Sollwertänderungen der Füllstände bereits vor dem restlichen Lastwechsellvorgang beginnen, ist ein anfängliches Absinken des Verlaufs des S-Faktors S_{Ar} zu sehen. Das Ziel des SLM ist es, ein signifikantes Absinken des MC-Füllstands L_{MC} im Rahmen der Reinheitsanforderungen an das GOX-Produkt $y_{O_2,GOX}$ zu verhindern. Dies kann durch einen annähernd konstanten Verlauf von S_{Ar} erreicht werden.

Für die Anwendung von SLM während eines turn-up ist eine ausreichende Menge an Flüssigkeit erforderlich, die in den entsprechenden Kolonnensümpfen vorhanden sein muss. Um wieder auf die initialen Füllstände von 100 % zu gelangen und somit einen ausreichenden Regelbereich der Füllstände in beide Richtungen zu garantieren, ist nach einem turn-up ein langsamer Ausgleichsprozess der Füllstände ratsam. Anderenfalls können Probleme beim Verschieben der Flüssigkeiten aus den Sümpfen entstehen. Als Letztes werden für den turn-up die OPEX betrachtet. Da die Menge an Feedluft analog zum turn-down auch hier für beide Fälle identisch ist, kann angenommen werden, dass die OPEX ebenfalls ähnlich sind. Die unterschiedlichen Verläufe der Turbinenmenge haben lediglich einen untergeordneten Einfluss auf den Gesamtenergieverbrauch.

Unter Verwendung des SLM-Konzepts ist es möglich, eine Lasterhöhung von 50 % mit einer Lastwechselrate von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ durchzuführen, ohne dass die Reinheitsanforderungen aus Tabelle 6.4 verletzt werden. Das SLM-Konzept kann ohne weiteren Aufwand auf die entsprechende Realanlage übertragen werden, was einem großen Schritt in Richtung der Erhöhung der Anlagenflexibilität entspricht. Die Analyse des turn-up unterstreicht weiter die Notwendigkeit, Lastwechsellvorgänge mittels DT vorab zu betrachten. Somit können Störszenarien wie ein N_2 -Durchbruch detailliert analysiert werden. Für dieses Störszenario ist lediglich eine begrenzte Menge an Betriebsdaten vorhanden, da dieser Zustand im Betrieb einer Realanlage vermieden wird. Durch in silico Studien können weitere Maßnahmen untersucht werden, um einen N_2 -Durchbruch zu verhindern oder die Zeit des nachgelagerten Produktionsverlusts zu minimieren.

6.2.4 Zusammenfassung und Fazit

In dieser Studie werden die Vorteile eines DT zur Verbesserung des Betriebsverhaltens einer ASU mit Ar-Abtrennung im Hinblick auf einen flexiblen Betrieb verdeutlicht. Aufgrund der Datenfülle, die der DT zur Verfügung stellt, ist es möglich, das Verhalten einer Anlage während Lastwechsellvorgängen im Detail zu untersuchen. Darüber hinaus können im Rahmen von offline Studien auch Lastwechsellvorgänge analysiert werden, die Reinheitsanforderungen verletzen, um dadurch Engpässe zu identifizieren. Dies ermöglicht die Entwicklung von innovativen Betriebskonzepten wie dem SLM, um die Flexibilität bei Bestandsanlagen zu erhöhen. Das SLM-Konzept erlaubt es, Lastverstellungen von 50 % mit einer Lastwechselgeschwindigkeit von $8 \frac{\%}{\text{min}}$ durchzuführen, ohne dabei die Reinheitsanforderungen zu verletzen oder einen N_2 -Durchbruch zu verursachen. Die jeweiligen Sollwertänderungen der Kolonnenfüllstände sind dabei anlagenspezifisch. Jedoch ist es denkbar, diese für unterschiedliche ASU-Topologien zu bestimmen und somit Ausgangspunkte für Realanlagen zu schaffen. Ausgehend davon können bei der Inbetriebnahme der Anlage individuell optimale Sollwertänderungen bestimmt werden, um so schnellere Lastwechsellvorgänge für jede ASU zu ermöglichen.

Ein weiterer Vorteil des DT ist die Möglichkeit, die Auswirkungen von Betriebsstrategien in Simulationsstudien zu quantifizieren und zu visualisieren, um diese im Design von Neuanlagen berücksichtigen zu können. Darüber hinaus ermöglicht der DT tiefgreifende Analyse- und Optimierungsmöglichkeiten bestehender Betriebskonzepte mittels dynamischer Simulation, die auf langjähriger Betriebserfahrung beruhen.

Weiter ist die Möglichkeit der Überwachung der kolonneninternen Fluidodynamik (S-Faktor) in Echtzeit ein enormer Vorteil für den Betrieb der Anlage, da diese als frühzeitiger Indikator für die Veränderung der Produktreinheiten genutzt werden kann. Daher sollte weiter in Richtung der Echtzeitfähigkeit des DT entwickelt werden, um diesen als Softsensor für die gesamte Anlage oder kritische Anlagenteile wie die LPC zu nutzen. Die Echtzeitfähigkeit der Simulation der virtuellen ASU ist ein erster Schritt in Richtung der dynamischen Optimierung von Lastwechsellvorgängen, was eine Voraussetzung für die Anwendung von komplexen Regelungsstrategien wie dem eNMPC ist. Zusätzlich kann durch offline Analysen des DT die Formulierung des dadurch

resultierenden Optimierungsproblems verbessert werden, da Variablen wie der S-Faktor als wichtige Nebenbedingungen identifiziert werden können.

6.3 Anlagenstillstand und Anfahren aus dem kalten Anlagenzustand – Industriell relevante Extremszenarien

In diesem Abschnitt wird ein DT einer typischen industriell eingesetzten ASU ohne Produktion von hochreinem Ar präsentiert. Diese ASU-Topologie, die einen geringeren Teil der von der Firma Linde betriebenen Flotte ausmacht ($\approx 1/3$), weist gegenüber den Anlagen mit Ar-Produktion ein von Grund auf höheres Flexibilitätspotential auf. Die nachfolgende Studie soll dazu beitragen, dieses zu quantifizieren. Die Verwendung eines DT bietet die Möglichkeit, in silico Analysen von Extremszenarien, die für das DSM relevant sind, durchzuführen. Es wird ein plötzlicher Anlagenstillstand und ein darauffolgendes Wiederanfahren aus dem kalten Anlagenzustand betrachtet, um eine Aussage darüber treffen zu können, wie schnell die gewünschte Produktreinheit nach einem Anfahrvorgang erreicht werden kann. Diese Information sowie die Identifikation von Einflussgrößen darauf ist für DSM-Betrachtungen besonders wertvoll. Der Begriff des kalten Anlagenzustands einer ASU wird im Verlauf des Abschnitts detailliert erläutert. Darüber hinaus wird eine Gefahrenanalyse durchgeführt, um sicherheitskritische Anlagenzustände während des Abschaltens zu vermeiden und so die Equipmentbelastung zu reduzieren.

Bezogen auf den Anlagenlebenszyklus (siehe Abbildung 4.2) ist diese Studie in *Stufe 4* – Inbetriebnahme sowie *Stufe 5* – Betriebsoptimierung einzuordnen, da u.a. ein Wiederanfahrvorgang betrachtet wird. Die verwendete virtuelle ASU basiert hier auf dem bestehenden optimierten Prozess- und Equipmentdesign aus separaten stationären Simulationen. Bei Letzterem wird nicht nur das Design von Schlüsselequipment wie Rektifikationskolonnen, Verdampfer/Kondensatoren oder Wärmeübertrager berücksichtigt, sondern auch Ventil- und Maschinenmodelle analog zu Abschnitt 4.3 verwendet. Für die nachfolgenden Simulationsstudien wird die höchste Modellgranularität der virtuellen ASU verwendet. Diese ist notwendig, um die Extremszenarien realitätsgetreu nachstellen zu können und so sicherzustellen, dass die gewonnenen Erkenntnisse dem realen Anlagenverhalten so genau wie möglich entsprechen. Diese Studie enthält Teile aus dem Artikel von KENDER ET AL. (2021a), welcher bereits in einem Fachjournal veröffentlicht wurde.

Bezogen auf die Regelungspyramide, dargestellt in Abbildung 3.8, findet sich die nachfolgende Studie auf *Level 1* (Basisregelung) wieder. Bei der Literatur ist die Studie in Abschnitt 3.3 bei den Studien zu Lastwechselanalysen und Betrachtungen von Anfahrvorgängen einzuordnen.

6.3.1 ASU-Topologie

Ein Fließbild der betrachteten ASU-Topologie ist in Abbildung 6.31 dargestellt. Die Basisregelung ist für diese Studie nicht eingezeichnet, weil diese für die folgenden Betrachtungen nicht relevant ist. Notwendiges Equipment sowie die einzelnen Sektionen der LPC sind jedoch gekennzeichnet.

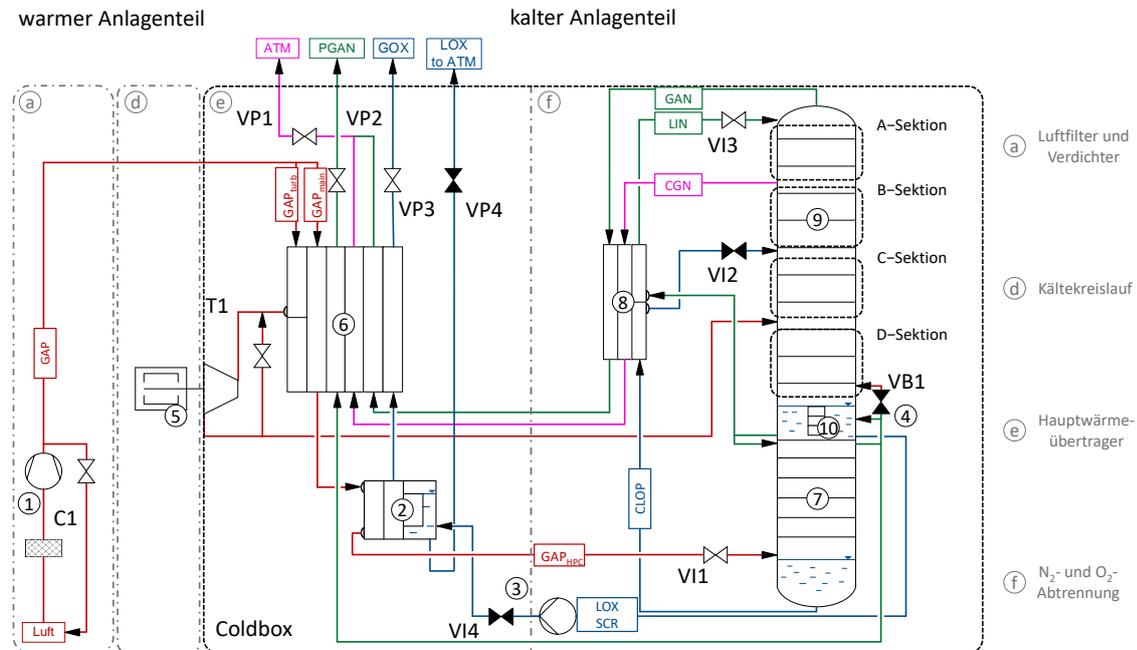


Abbildung 6.31: Darstellung des Verfahrensfließbilds einer ASU ohne Ar-Produktion inklusive der Bezeichnungen für die Kolonnensektionen der LPC sowie Kennzeichnung von relevantem Equipment

Analog zu den vorherigen Studien in den Abschnitten 6.1 und 6.2 werden bei dem hier verwendeten DT gegenüber der ASU-Topologie in Abbildung 3.2 die Vorkühlung (Prozessblock (b)) sowie die Luftreinigung durch die Adsorber (Prozessblock (c)) nicht berücksichtigt. Die in Prozessblock (a) angesaugte und verdichtete Prozessluft wird bereits als gereinigt und vorgekühlt angenommen. Gegenüber der in Abbildung 3.2 vorgestellten ASU fehlt hier ebenfalls der Prozessblock (g), die Ar-Abtrennung. In dieser Anlagentopologie können nur zwei der drei Hauptkomponenten aus der Luft (N_2 und O_2) in hochreiner Form gewonnen werden. Es handelt sich um ausschließlich gasförmige Produkte. Das Hauptprodukt der dargestellten ASU ist GOX. Eine geringe Menge an PGAN wird am Kopf der HPC abgezogen und als Instrumentengas verwendet. Zusätzlich wird unreiner gasförmiger Stickstoff, engl.: *crude gaseous nitrogen* (CGN), im oberen Drittel der LPC abgezogen und an die Atmosphäre abgeblasen. Das N_2 -Kopfprodukt der LPC (GAN) wird zur Regelung des Kopfdrucks verwendet und nach dem MHEX mit dem CGN-Strom vermischt und anschließend an die Atmosphäre abgeblasen (ATM). Der LOX-Strom dient aus Gründen der Prozesssicherheit zur Spülung des Nebenkondensators, engl.: *side condenser/reboiler* (SCR) (siehe Abschnitt 3.1).

Die Besonderheiten der in Abbildung 6.31 dargestellten ASU-Topologie sind das Bypass-Ventil $VB1$ (④) zwischen HPC und LPC und der SCR (②). In Letzterem wird das LOX-Produkt aus dem MC, welches in einer zusätzlichen Pumpe (③) auf den gewünschten Enddruck gebracht wird, verdampft und dabei der kalte Hauptluftstrom GAP_{main} aus dem MHEX partiell verflüssigt, bevor er in der HPC eingespeist wird (GAP_{HPC}). GAP steht dabei für gasförmige Druckluft, engl.: *gaseous air pressurized*. Das Prinzip des Nebenkondensators entspricht einer Innenverdichtung, welche in Abschnitt 6.1 verwendet wird. Allerdings finden die Phasenwechsel hier nicht im MHEX, sondern im SCR statt. Das Bypass-Ventil ist relevant für Anfahrvorgänge aus dem warmen Zustand. Für diese Studien wird dieses Ventil als durchgehend geschlossen betrachtet. Im Folgenden werden die betrachteten Szenarien erläutert sowie die Simulationsergebnisse vorgestellt.

6.3.2 Ergebnisse der Studien der Extremszenarien

Beim Szenario des plötzlichen Anlagenstillstands wird die ASU zunächst an ihrem nominellen Betriebspunkt bei 100 % Last betrieben. Dann wird innerhalb von 30 s der Randwert für den Druck des Hauptluftstroms GAP auf Umgebungsbedingungen reduziert (siehe Abschnitt 4.2.2 bzgl. der Interpretation einer ASU als Drucknetzwerk). Dies entspricht dem Abschalten des Hauptluftkompressors. Dadurch kommt die Strömung in der ASU zum Erliegen und es stellt sich ein kalter Stand-by-Zustand der Anlage ein. Dieser ist der Ausgangszustand für den Wiederaufstartvorgang, bei dem der Kompressor wieder hochgefahren wird, um den initialen Zustand wiederherzustellen. Zusätzlich zum Hoch- und Herunterfahren des Kompressors werden die Ventilstellungen während der Vorgänge manuell gesetzt. Die notwendigen Ventile sind in Abbildung 6.31 gekennzeichnet. Außerdem wird für den Anlagenstopp eine Gefahrenanalyse durchgeführt. Um den Initialzustand zu erreichen, wird eine Simulation eines Anfahrvorgangs aus dem warmen Zustand analog zu KLEIN ET AL. (2020) benötigt. Die für diese Studie verwendete virtuelle ASU besteht aus 729 Differentialgleichungen und 23910 algebraischen Gleichungen.

Anlagenstillstand

Der Anlagenstillstand ist an den in KENDER ET AL. (2019) präsentierten Stillstand einer Linde Doppelkolonne angelehnt. In diesem Szenario wird ein Zeitraum von 3600 s Simulationszeit betrachtet. Die Zeitpunkte der charakteristischen Ereignisse während des Vorgangs sind nummeriert und in Tabelle 6.5 zusammengefasst. Die benötigte CPU-Zeit für die Simulation des Stillstand-Szenarios beträgt 13 h und 39 min.

Ausgehend von einem stationären Anlagenbetrieb wird bei Zeitpunkt $t = 50$ s die Druckrandbedingung des eintretenden Luftstroms GAP innerhalb von 30 s linear auf Umgebungsbedingungen abgesenkt (① - ③). Weiter werden in diesem Zeitraum die in Abbildung 6.31 in weiß gekennzeichneten Ventile $VP1-3$, $VI1$ und $VI3$ komplett geöffnet, wohingegen die in schwarz gekennzeichneten Ventile $VI2$, $VI4$ und $VP4$ komplett

Tabelle 6.5: Charakteristische Ereignisse während eines Anlagenstillstands

Zeitpunkt t in s	Nummer	Ereignis
0		Stationärer Anlagenbetrieb
50	①	Beginn Anlagenstillstand
65	②	Passivierung Nebenkondensator
80	③	Hauptkompressor Stopp
92	④	Passivierung MC
535	⑤	Trockenlaufen der ersten Trennstufe in der LPC
2547	⑥	Kalter Stand-by Zustand

geschlossen werden. Das Bypass-Ventil $VB1$ ist während der Studie durchgehend geschlossen. Diese Ventilstellungen sind für den Druckausgleich der Anlage notwendig. Die restliche kryogene Flüssigkeit sammelt sich im MC und SCR sowie im Sumpf der HPC.

In Abbildung 6.32 sind die zeitlichen Verläufe der Stoffmengenströme der unterschiedlichen Produkte GOX, PGAN, CGN und GAN am warmen Ende des MHEX über einen Zeitraum von 360 s im oberen Diagramm dargestellt. Die zeitlichen Verläufe der Luft zum SCR (GAP_{main}) sowie der Turbinenluft (GAP_{turb}) sind im unteren Diagramm dargestellt. In dieser und allen weiteren Abbildungen sind die zeitlichen Verläufe der Stoffmengenströme auf den höchsten vorkommenden Wert des jeweiligen Stoffmengenstroms normiert. Dies wird durch den hochgestellten Index N in den Achsenbeschriftungen gekennzeichnet. Im Fließtext wird nicht zwischen normierten und nicht-normierten Größen unterschieden.

Die Öffnung des Ventils $VP2$ resultiert in einem leicht steigenden Verlauf des PGAN-Stoffmengenstroms während des Anlagenstopps. Nach 80 s ist dessen Maximum erreicht. Danach sinkt der Verlauf ab, da ein Druckausgleich in der HPC stattfindet. Eine andere Möglichkeit für den Druckausgleich ist über den Strömungsweg der Feedluft, welche im unteren Diagramm abgebildet ist. Ab dem Zeitpunkt $t = 50$ s nimmt der Verlauf des GAP_{main} -Stoffmengenstroms rapide ab. Bei $t \approx 52$ s ist ein Abflachen des Verlaufs zu erkennen. Danach ist bei $t \approx 60$ s ein Vorzeichenwechsel zu sehen, was einer Strömungsumkehr entspricht. Ab diesem Zeitpunkt tritt über diesen Strömungsweg kaltes Gas aus der HPC aus und strömt durch die Kondensatorseite des SCR und den MHEX zurück. Der Hauptluftkompressor $C1$ wird in diesem Fall durch ein Ventil umgangen, bevor die Luft an die Umgebung abgeblasen wird. Bei $t \approx 76$ s ist der maximale Wert der Rückströmung zu erkennen. Am Ende des Herunterfahrens des Hauptluftkompressors (③) beginnt der Verlauf von GAP_{main} sich langsam gegen null anzunähern, bis der Druckausgleich der HPC vollständig abgelaufen ist. Die Änderung des GAP_{main} -Stoffmengenstroms über die Zeit wird im weiteren Verlauf dieser Studie detailliert diskutiert.

Der Druckausgleich der LPC wird durch die Öffnung von $VP1$ initiiert, resultierend in einem kurzen Anstieg im Verlauf des CGN-Stoffmengenstroms. Bei $t \approx 56$ s ist

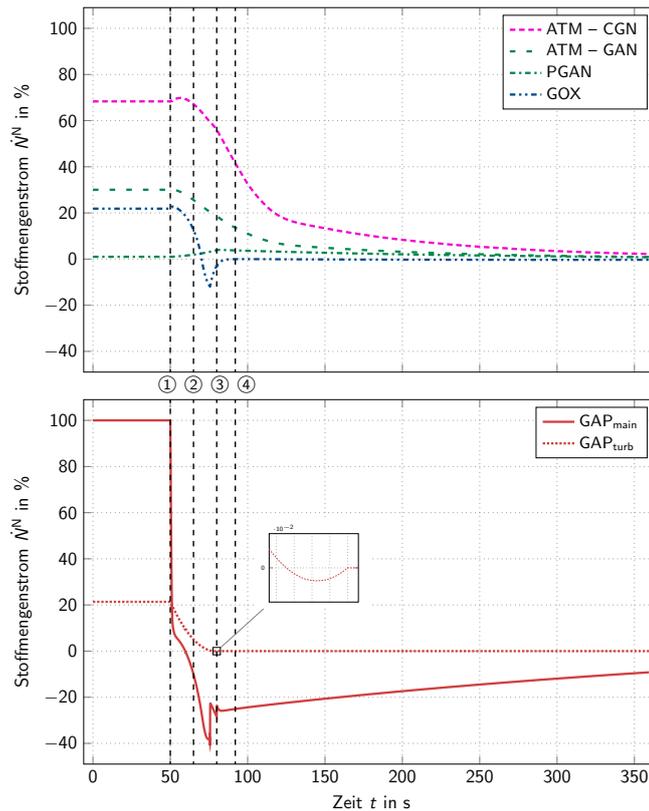


Abbildung 6.32: Zeitliche Verläufe der Stoffmengenströme am warmen Ende des MHEX

ein Maximum des Verlaufs zu sehen, bevor der Druckausgleich der LPC beendet ist und dieser gegen null konvergiert. Der Verlauf des GAN-Stoffmengenstroms zeigt ein unterschiedliches Verhalten, da dieser mit Beginn des Anlagenstillstands abfällt. Diese Abweichungen zwischen CGN und GAN werden bei der genaueren Betrachtung der LPC-Fluidodynamik diskutiert.

Der Verlauf des Stoffmengenstroms \dot{N}_{turb} der Luft, die durch die Turbine geleitet wird, sinkt kontinuierlich während des Anlagenstopps. Beim Zeitpunkt $t \approx 78$ s kann eine minimale Rückströmung durch das Bypassventil der Turbine $T1$ beobachtet werden, die durch den Druckausgleich der LPC hervorgerufen wird.

Durch die Öffnung des Ventils $VP3$ beginnt der Druckausgleich der Verdampferseite des SCR. Analog zum Verhalten des Verlaufs des CGN-Stoffmengenstroms steigt auch der des GOX-Produktstroms erst an, bis bei $t \approx 52$ s ein Maximum, gefolgt von einem rapiden Absinken, zu erkennen ist. Bei $t \approx 70$ s kommt es zu einer Strömungsumkehr des GOX-Stoffmengenstroms. Bei $t \approx 77$ s ist die maximale Rückströmung zu erkennen. Danach konvergiert der Verlauf des GOX-Stoffmengenstroms gegen null. So lange der übertragene Wärmestrom \dot{Q}_{SCR} des SCR ungleich null ist, bleibt auch eine minimale Strömung des GOX-Produkts erhalten. Dieses Verhalten zeigt, dass bei einem Herunterfahren der Anlage die Auswirkungen auf thermisch gekoppelte Apparate berücksichtigt werden müssen, um Störszenarien zu vermeiden (siehe Abschnitt 6.3.2).

In Abbildung 6.33 ist der Verlauf des Wärmestroms \dot{Q}_{SCR} im oberen und der des Drucks $p_{\text{SCR,LOX}}$ im SCR auf der Verdampferseite im unteren Diagramm über einen Zeitraum von 360 s dargestellt.

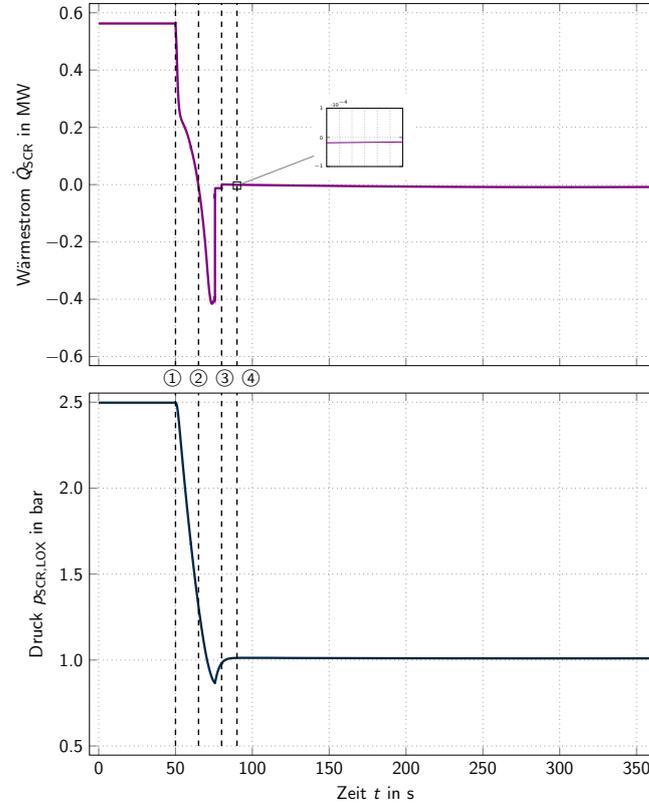


Abbildung 6.33: Zeitliche Verläufe des übertragenen Wärmestroms des SCR (oben) und des SCR-Drucks auf der Verdampferseite (unten)

Im SCR wird im Normalbetrieb der kalte Hauptluftstrom GAP_{main} partiell verflüssigt, was den benötigten Wärmestrom \dot{Q}_{SCR} für die Verdampfung des LOX bereitstellt. Im stationären Betrieb gilt daher $T_{\text{dew,SCR,GAP}} > T_{\text{bub,SCR,LOX}}$ (siehe Abbildung 6.36 unten). Der Verlauf des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{SCR} verhält sich dabei ähnlich zum Stoffmengenstrom GAP_{main} in Abbildung 6.32. Das führt zu dem Schluss, dass der Zustand des Hauptluftstroms GAP_{main} auf der Kondensatorseite des SCR maßgeblich für den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{SCR} ist.

Bei $t = 65$ s ergibt sich eine Nullstelle des Verlaufs von \dot{Q}_{SCR} , was gleichbedeutend mit $T_{\text{SC,dew,GAP}} = T_{\text{SC,bub,LOX}}$ ist (②). Danach dreht sich das Vorzeichen des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{SCR} des SCR um. Der Luftstrom wird nun nicht länger partiell verflüssigt, sondern aufgeheizt und auf der Verdampferseite wird LOX nicht mehr verdampft, sondern das restliche O_2 -reiche Gas kondensiert. Dies beschleunigt den Druckausgleich auf der Verdampferseite. Bei $t \approx 70$ s kann Unterdruck ($p_{\text{SCR,LOX}} < p_{\text{amb}}$) beobachtet werden, welcher eine Strömungsumkehr des GOX-Produkts verursacht. Bei $t \approx 76$ s ist im Verlauf des Drucks $p_{\text{SCR,LOX}}$ ein Minimum bei $p_{\text{SCR,LOX,min}} = 0,867$ bar zu erkennen. Ab dem Zeitpunkt $t \approx 90$ s wird wieder nahezu das Umgebungsdruckniveau $p_{\text{SCR,LOX}} \approx p_{\text{amb}}$ erreicht. Jedoch kann ein minimaler Wert des Wärmestroms $\dot{Q}_{\text{SCR}} \neq 0$

bis zum kalten Stand-by bei $t = 2547$ s beobachtet werden, was zu einer minimalen Strömung des GOX-Produkts führt.

Bei Unterdruckbedingungen auf der Verdampferseite des SCR handelt es sich um ein Gefahrenszenario, welches durch Anpassung der Ventilschließungen während des Anlagenstopps verhindert werden muss. Im Abschnitt zur Gefahrenanalyse (siehe Abschnitt 6.3.2) werden daher unterschiedliche Änderungen der Ventilöffnungsgrade zur Vermeidung des Unterdrucks vorgestellt. Der DT ermöglicht die *in silico* Untersuchung dieser Vorgänge und minimiert dadurch Risiken für die Realanlage.

Im Folgenden wird der zeitliche Verlauf des Stoffmengenstroms der Hauptluft GAP_{main} während des plötzlichen Anlagenstopps detailliert diskutiert, da hier über einen längeren Zeitraum eine Strömungsumkehr vorliegt. Daher sind in Abbildung 6.34 die Druckverläufe der untersten Trennstufe der HPC, der Kondensatorseite (GAP-Seite) des SCR sowie des Austritts des Hauptluftverdichters im oberen Diagramm dargestellt. Das untere Diagramm enthält die Verläufe der Stoffmengenströme des Hauptluftstroms GAP_{main} sowie des direkten Einspeisestroms in die HPC GAP_{HPC} .

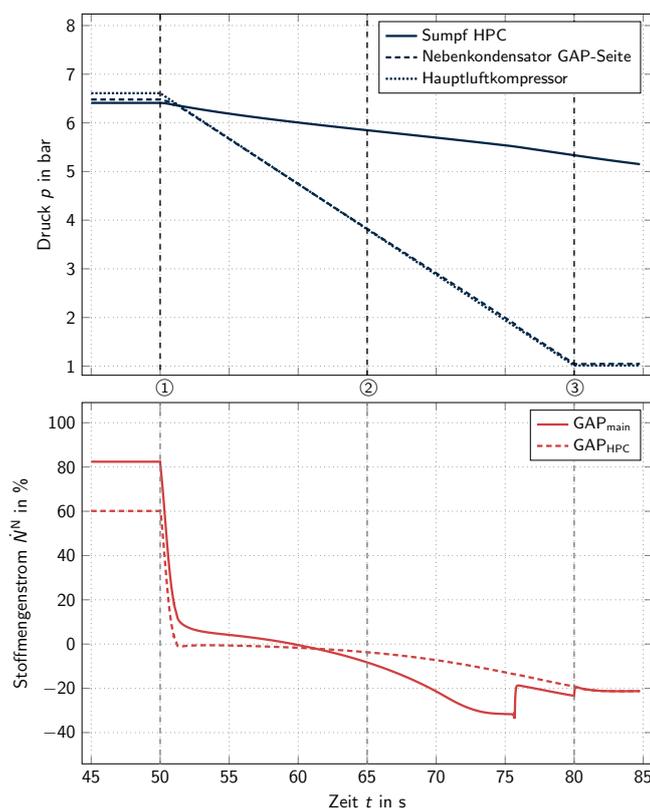


Abbildung 6.34: Zeitliche Verläufe der Druckniveaus (oben) sowie der normierten Stoffmengenströme der unterschiedlichen Luftströme (unten)

Nach Beginn des Anlagenstopps bei $t = 50$ s beginnen die Verläufe der Drücke in Abbildung 6.34 abzunehmen. Im Allgemeinen verläuft der Druckausgleich der HPC langsamer als im SCR.

Die rapide Abnahme des Luftstroms GAP_{HPC} zur HPC in den ersten Sekunden ist durch die vergleichsweise langsame Druckabnahme der HPC gegenüber dem SCR zu erklären. Dies resultiert aus der Ventilgröße des Ventils $VI1$, welche den Stoffmengenstrom zwischen SCR und HPC limitiert. Solange das Druckniveau der Kondensatorseite des SCR über dem der HPC liegt, kann beim Druckausgleich das Gas in der Kolonne nur über das Ventil $VP2$ des PGAN-Produkts entweichen, was den Druckausgleich der HPC zusätzlich verlangsamt.

Der Druckverlauf im SCR hingegen folgt dem des Hauptlaufkompressors annähernd direkt. Der ablaufende Kondensationsvorgang begünstigt dabei die Druckminderung. Beim Zeitpunkt $t \approx 51$ s ist im Verlauf des Stoffmengenstroms von GAP_{HPC} eine Nullstelle zu erkennen. Ab diesem Zeitpunkt ist eine Rückströmung des Gases von der untersten Trennstufe der HPC in die Kondensatorseite des SCR ersichtlich. Der weitere zeitliche Verlauf von GAP_{PC} resultiert aus der Kombination des Ventilöffnungsgrads des Ventils $VI1$ sowie des Druckgradienten zwischen HPC und SCR.

In Abhängigkeit der unterschiedlichen Widerstandsbeiwerte der Strömungswege entweicht das restliche Gas in der HPC entweder über den PGAN- oder den GAP-Weg. Daher kann innerhalb der HPC eine Umkehr der Gasströmung beobachtet werden. In Abbildung 6.35 wird daher die interne Strömung des Gases in der HPC über die Kolonnenhöhe bei $t = 120$ s dargestellt, da zu diesem Zeitpunkt in Abbildung 6.32 Vorwärtsströmung über den PGAN- und Rückströmung über den GAP-Weg zu erkennen ist.

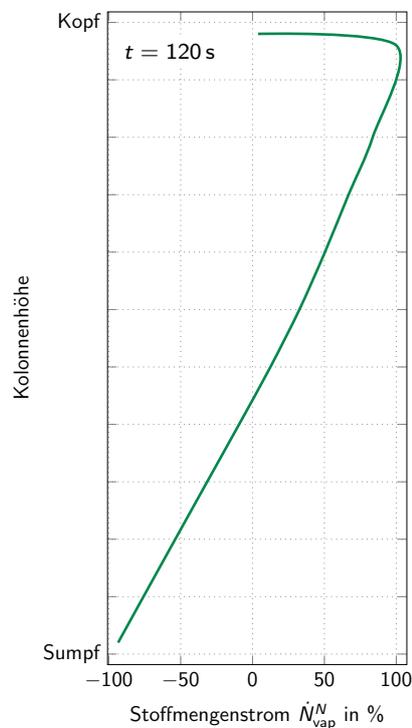


Abbildung 6.35: Kolonneninterne Gasströmung über die Höhe der HPC bei $t = 120$ s

Es ist deutlich zu erkennen, dass das Gas im unteren Drittel vorzugsweise über den GAP-Weg in Richtung des SCR entweicht, resultierend in einer Strömungsumkehr innerhalb der HPC. Die Zunahme der Gasströmung zur obersten Trennstufe lässt sich durch den sich dort befindenden PGAN-Abzug begründen. Lediglich ein minimaler Anteil des Gases aus der HPC strömt weiter nach oben in Richtung des MC. Abbildung 6.35 verdeutlicht die Notwendigkeit, auch innerhalb der Kolonne eine auftretende Strömungsumkehr darstellen zu können, um das Szenario eines Anlagenstillstands physikalisch akkurat zu beschreiben.

Im Verlauf des Hauptluftstroms GAP_{main} (siehe Abbildung 6.34) kann bei $t \approx 62$ s ein Nulldurchgang beobachtet werden. Dies ist auf mehrere Gründe zurückzuführen. Zunächst ist mit dem verwendeten druckgetriebenen Ansatz (siehe Abschnitt 4.2.2) eine Darstellung der Strömungsumkehr nur für die Gas-, nicht aber für die Flüssigphase möglich. Daher ist in der Simulation der Luftstrom GAP_{HPC} rein gasförmig und strömt vorgegeben durch den Druckgradienten entgegen der regulären Strömungsrichtung von der HPC in den SCR. Ein Mitriss von Flüssigkeit kann nicht dargestellt werden. Physikalisch kann dies folgendermaßen interpretiert werden. Durch die kontinuierliche Rückströmung von der HPC in den SCR ist es der kondensierten Flüssigkeit auf der GAP-Seite des SCR nicht möglich, in die HPC zu strömen. Folglich kommt es zu einer Akkumulation der Flüssigkeit auf der Kondensatorseite des SCR resultierend in einem Verlangsamen des Druckabbaus. Weiter haben die Phasenumwandlungsprozesse auf der GAP-Seite des SCR einen Einfluss auf die Geschwindigkeit des Druckausgleichs, was im Folgenden genauer betrachtet wird.

Dazu wird in Abbildung 6.36 der flüssige Holdup $h_{\text{SCR,GAP}}$ der GAP-Seite des SCR im oberen sowie die Tau- und Siedetemperaturen $T_{\text{dew,SCR,GAP}}$ und $T_{\text{bub,SCR,LOX}}$ im unteren Diagramm dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass das Absinken der Temperatur $T_{\text{dew,SCR,GAP}}$, verglichen mit der Verdampferseite $T_{\text{bub,SCR,LOX}}$, steiler ist. Bis sich bei $t = 65$ s die Verläufe der Tau- und der Siedetemperaturen schneiden, erhöht sich die Menge an Flüssigkeit $h_{\text{SCR,GAP}}$ im SCR durch den fortlaufenden Kondensationsprozess (②). Mit sich angleichenden Temperaturen reduziert sich die Akkumulation der Flüssigkeit und führt zusätzlich zu einer Abnahme des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{SCR} (siehe Abbildung 6.33). Nach $t = 65$ s beginnt die Flüssigkeit $h_{\text{SCR,GAP}}$ auf der Kondensatorseite zu verdampfen. Beides verlangsamt den Druckausgleich auf der GAP-Seite des SCR.

Bei $t \approx 74$ s erreicht die Rückströmung von GAP_{main} ihren Maximalwert (siehe Abbildung 6.34). Danach nimmt deren Betrag aufgrund des Absinkens der Temperaturdifferenz $T_{\text{dew,SCR,GAP}} - T_{\text{bub,SCR,LOX}}$ ab. Nach dem Zeitpunkt $t \approx 76$ s ist der flüssige Holdup $h_{\text{SCR,GAP}}$ bereits komplett verdampft, ersichtlich durch einen sprunghaften Anstieg der Tautemperatur $T_{\text{dew,SCR,GAP}}$. Dies führt zu einer entsprechenden Veränderung des übertragenen Wärmestroms und folglich des Drucks auf der Kondensatorseite des SCR. Der Verlauf des Hauptluftstroms GAP_{main} wird direkt von dieser Druckänderung beeinflusst und verhält sich analog (siehe Abbildung 6.34).

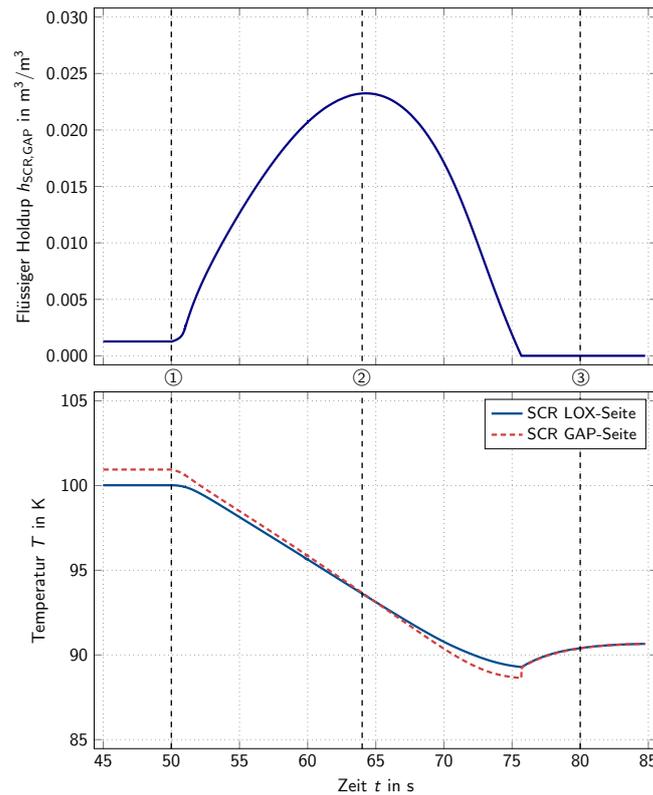


Abbildung 6.36: Zeitlicher Verlauf des flüssigen Holdups der Kondensatorseite (GAP-Seite) des SCR (oben) sowie der Tau- und Siedetemperaturen auf beiden Seiten des SCR (unten)

Bei $t = 80$ s ist der Hauptluftkompressor komplett abgeschaltet (③). Wie Abbildung 6.34 darstellt, führt dies zu einer sprunghaften Änderung des Druckgradienten zwischen dem SCR und dem Austrittsdrucks des Hauptluftkompressors, was sich in einem analogen Verlauf des Stoffmengenstroms GAP_{main} widerspiegelt. Danach sind die Verläufe der Luftströme GAP_{main} und GAP_{HPC} ähnlich, bis der kalte Stand-by Zustand erreicht ist. Der für diese Studie verwendete DT ermöglicht es, diese komplexen Vorgänge während des Anlagenstopps mit hoher Genauigkeit darzustellen.

Als Letztes wird das Verhalten der Fluidodynamik der LPC während des Anlagenstopps genauer betrachtet. In Abbildung 6.37 sind dafür die kolonneninternen Flüssig- (oben) und Gasströmungen (unten) auf der obersten Trennstufe der jeweiligen LPC-Sektion (siehe Abbildung 6.31) dargestellt.

Kurz nach Beginn des Anlagenstopps kann ein Maximum in der Flüssigströmung der A-Sektion beobachtet werden. Das ist auf den erhöhten LIN-Rücklauf aufgrund der Öffnung des Ventils $VI3$ sowie dem Rückgang des Gasgegenstroms zurückzuführen. Dieses Maximum ist mit entsprechender zeitlicher Verzögerung auch in den darunterliegenden Sektionen zu erkennen. Danach nehmen die Verläufe der Flüssigströmungen kontinuierlich ab und die Flüssigkeit sammelt sich im MC.

Weiter wird die Regularisierung der verwendeten Korrelationen (siehe Abbildung 5.8) in den Verläufen sichtbar. In den Sektionen B, C und D sind dabei ähnliche Verläufe

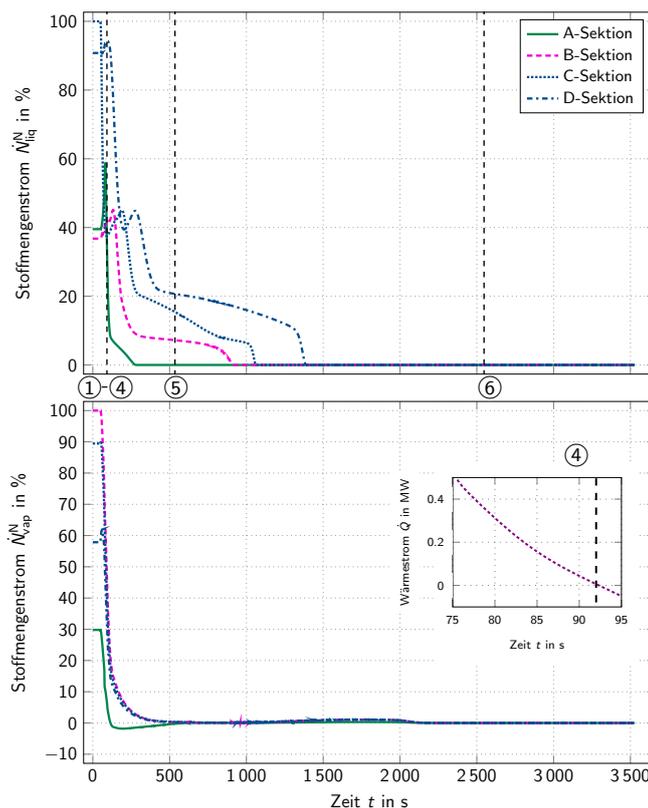


Abbildung 6.37: Zeitliche Verläufe der normierten kolonneninternen Flüssig- (oben) und Gasströmungen (unten)

zu erkennen. Nach einem anfänglich starken Absinken der internen Gas- und Flüssigkeitsströmungen flachen die Verläufe der Flüssigströmungen ab und konvergieren mit einem sigmoidalen Verlauf (Regularisierung) gegen null, was dem Trockenlaufen eines Kolonnenbodens entspricht.

Das Verhalten der kolonneninternen Flüssigkeitsströmung der A-Sektion ist unterschiedlich. Hier kann der Bereich, in dem die Regularisierungen aktiv sind, bereits nach $t \approx 116$ s beobachtet werden. Der Verlauf unterscheidet sich jedoch zu der in Abbildung 5.8 dargestellten Form, was durch die Gasströmung in der A-Sektion begründet werden kann. Wie bereits in Abbildung 6.32 zu erkennen ist, wird der Druckausgleich über den CGN-Weg bevorzugt. Der Grund hierfür liegt in den unterschiedlichen Werten der Druckverluste des SC und des MHEX. Daher nimmt der Verlauf der Gasströmung in der A-Sektion rapide ab und eine Strömungsumkehr kann bereits bei $t \approx 116$ s beobachtet werden. Dies ist ebenfalls der Grund für die anfängliche geringe Erhöhung der Gasströmung in der B-Sektion. Der Regularisierungsbereich des flüssigen Holdups (siehe Abbildung 5.8) wird ab Zeitpunkt $t \approx 75$ s erreicht, resultierend aus der Gasströmung in der A-Sektion. Durch den schnellen Abfall, gefolgt von Strömungsumkehr, wird das Trockenlaufen der Kolonnenböden in dieser Sektion beschleunigt, was den Verlauf der Flüssigströmung der A-Sektion bedingt. Bei Zeitpunkt $t = 535$ s ist der oberste Boden der LPC trocken gelaufen.

Bei $t = 2547$ s können keine merklichen Änderungen der Strömungen mehr beobachtet werden und der Zustand des kalten Stand-by ist erreicht. Die Simulation endet beim Zeitpunkt von $t = 3600$ s im Ausgangszustand für das Wiederaufahren aus dem kalten Anlagenzustand.

Zuletzt werden zwei wichtige Kriterien, welche für die Dauer des Wiederauffahrens maßgeblich sind, betrachtet. Dabei handelt es sich um den O_2 -Stoffmengenanteil $x_{O_2,SCR}$ im SCR auf der Verdampferseite und die Füllstände L_{SCR} und L_{MC} des SCR sowie des MC. Ausgehend von einem initialen Wert von $x_{O_2,SCR,start} = 0.9884 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ nimmt dieser Verlauf über die Zeit stetig ab, bis er bei einem Zeitpunkt von $t \approx 2180$ s seinen Endwert von $x_{O_2,SCR,end} = 0.8825 \frac{\text{mol}}{\text{mol}}$ erreicht. Der SCR-Füllstand L_{SCR} konvergiert gegen einen Endwert von $L_{SCR,end} = 101$ %. Der Wert des MC-Füllstands L_{MC} am Ende des Anlagenstopps beträgt $L_{MC,end} = 193$ %

In dieser Studie wird ersichtlich, dass es sich bei einem plötzlichen Anlagenstillstand um ein hochkomplexes Szenario mit Phänomenen wie Strömungsumkehr und Phasenwechseln handelt. Daher sind Regularisierungen von gängigen Korrelationen für den Druckverlust und den flüssigen Holdup von Siebböden (siehe Abschnitt 5.3) notwendig, um ein robustes Lösen dieses numerisch sehr anspruchsvollen Szenarios zu ermöglichen. Neben den Rektifikationskolonnen sind auch bei den restlichen Grundoperationen Regularisierungen zur Beschreibung von Nullströmung, Strömungsumkehr und Phasenwechsel notwendig, die in Kapitel 5 erläutert sind.

Weiter wird gezeigt, dass ein simples Szenario wie das Herunterfahren des Hauptluftverdichters und der resultierende Druckausgleich der Anlage Gefahrensituationen wie Unterdruckbedingungen im SCR herbeiführen kann. Diese Erkenntnis bestätigt, dass die verwendete Modellgranularität der virtuellen ASU notwendig ist, um relevante thermo- und fluiddynamische Vorgänge abzubilden. Es wird gezeigt, dass der gesamte Betriebsbereich einer ASU mit Hilfe des DT abgebildet werden kann. Die Betrachtung eines Anlagenstoppszenarios ist für den flexiblen Anlagenbetrieb essentiell, da die Dauer des Stillstands die Randbedingungen für das Wiederaufahren aus dem kalten Anlagenzustand definiert. Dadurch ergibt sich abhängig von der Stillstandszeit eine individuelle Dauer für den Wiederaufahrtvorgang. Die Vorhersagegenauigkeit dieses Zeitraums hat Einfluss auf das DSM für eine flexible ASU.

Neben den Vorteilen des DT für Studien bzgl. des flexiblen Anlagenbetriebs wird nachfolgend eine Gefahrenanalyse durchgeführt, um Möglichkeiten für eine Vermeidung von Unterdruck im SCR zu ermitteln.

Gefahrenanalyse

Wie in Abbildung 6.33 zu erkennen ist, führt der beschriebene Anlagenstopp zu Unterdruckbedingungen auf der Verdampferseite (LOX-Seite) des SCR. In diesem Abschnitt werden unterschiedliche Änderungen des relativen Ventilhubs des Ventils $VP3$ präsentiert und deren Auswirkungen diskutiert. Abbildung 6.38 zeigt drei unterschiedliche zeitliche

Verläufe für den relativen Ventilhub des Ventils $VP3$ und deren Auswirkungen auf den Druck auf der Verdampferseite des SCR.

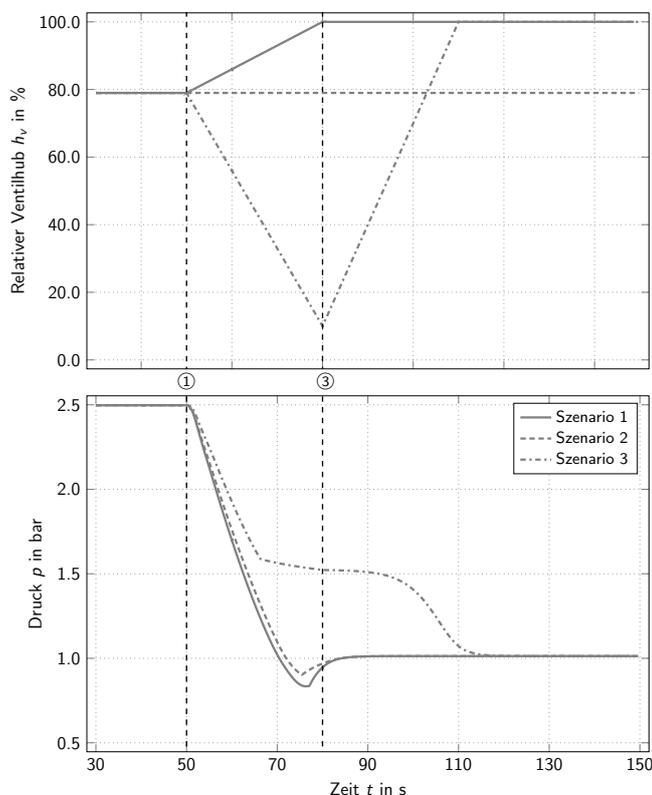


Abbildung 6.38: Zeitlicher Verlauf des relativen Ventilhubes des Ventils $VP3$ (oben) und des Druckniveaus auf der Verdampferseite des SCR (unten)

Szenario 1 entspricht dem bereits präsentierten Anlagenstopp, bei dem $VP3$ im Zeitraum $\Delta t = 50 - 80$ s komplett geöffnet wird. Im zweiten Szenario wird der relative Ventilhub während des Vorgangs konstant gehalten. Jedoch führt auch dieses Szenario zu Unterdruckbedingungen im SCR ($p_{SCR,LOX} < p_{amb}$), auch wenn das Druckniveau generell höher bleibt als in Szenario 1. Bei Szenario 3 wird der relative Ventilhub während des Anlagenstopps verringert und nach dem Herunterfahren des Hauptluftkompressors bei $t = 60$ s komplett geöffnet. Dieses Vorgehen führt zu einem höheren Druckniveau und verhindert dadurch eine Gefahrensituation durch Unterdruck.

Diese Studie verdeutlicht, dass das Ventil $VP3$ zunächst weiter geschlossen werden muss, um Unterdruck im SCR zu verhindern. Bei Szenario 3 handelt es sich um ein konservatives Vorgehen. Der dadurch verlangsamte Druckausgleich der Verdampferseite des SCR hat jedoch keine Auswirkungen auf den weiteren Verlauf des Anlagenstopps.

Erneut zeigt sich, dass der DT mit einer virtuellen ASU in der höchsten Modellgranularität notwendig ist, um das Verhalten von hochintegrierten Anlagen wie ASUs während schnellen und extremen Lastwechselszenarien besser verstehen und abbilden zu können. Dieser Ansatz ermöglicht eine zielführende Analyse und Optimierung von Prozesslimitierungen jeglicher Betriebsfälle.

Wiederanfahren aus dem kalten Anlagenzustand

Als Letztes wird im Rahmen dieser Studie ein Wiederanfahrvorgang aus dem kalten Anlagenzustand präsentiert. Kalter Anlagenzustand bedeutet, dass die thermischen Speichermassen im kalten Anlagenteil (siehe Abbildung 6.31) noch kryogene Temperaturen aufweisen und sich Flüssigkeit in den Kolonnensämpfen oder den Verdampfer/Kondensatoren befindet. Das Ziel dieser Teilstudie ist es, den Zeitraum zu ermitteln, bis die Anlage ausgehend vom Ruhezustand hochgefahren ist und die Produkte der ASU wieder in der geforderten Menge und Reinheit produziert werden können.

Analog zu einem Anfahrvorgang aus dem warmen Anlagenzustand, wie beispielsweise in KLEIN ET AL. (2020) vorgestellt, wird hier der Hauptluftkompressor innerhalb von 300 s hochgefahren (①-③). Simultan werden in diesem Zeitraum die Ventilstellungen manuell auf ihren initialen Wert verändert. Danach werden die Regelkreise der Basisregelung aktiviert (automatischer Modus). In Tabelle 6.6 sind die charakteristischen Ereignisse während des Wiederanfahrens aus dem kalten Anlagenzustand zusammengefasst. Die benötigte CPU-Zeit für die Simulation des Wiederanfahrvorgangs beträgt 2 h und 56 min.

Tabelle 6.6: Charakteristische Ereignisse beim Wiederanfahren aus dem kalten Anlagenzustand

Zeitpunkt t in s	Nummer	Ereignis
0		Kalter Stand-by-Zustand
50	①	Beginn Wiederanfahrscenario
157	②	Aktivierung MC
350	③	Ende des Druckaufbaus - Regelung aktiv
5434	④	Anforderungen an GOX-Produkt erfüllt
120000	⑤	Mathematisch stationärer Zustand

Der Austrittsdruck des Hauptluftverdichters $C1$ wird linear erhöht. Das führt zu einem Druckgradienten zwischen dem eintretenden Luft- und den Produktströmen und folglich zu einer Durchströmung der Anlage. Abbildung 6.39 stellt den zeitlichen Verlauf des Austrittsdrucks p_{GAP} des Hauptluftverdichters (unten) sowie den des Stoffmengenstroms \dot{N}_{GAP} der Feedluft (oben) dar.

Zu Beginn des Wiederanfahrvorgangs bei $t = 50$ s kann ein rapider Anstieg des Verlaufs des GAP-Stoffmengenstroms aufgrund des Druckaufbaus in der Anlage beobachtet werden (①). Vor der Aktivierung des MC bei $t = 157$ s, resultierend in einem weiteren Anstieg des Stoffmengenstroms \dot{N}_{GAP} , verläuft der GAP-Stoffmengenstrom annähernd konstant (②). Am Ende des Druckaufbaus bei $t = 350$ s (③) ist ein Maximum des Verlaufs des GAP-Stoffmengenstroms erreicht. Danach nähert sich dieser seinem stationären Endwert an.

Der GAP-Stoffmengenstrom wird maßgeblich durch den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{MC} am MC bestimmt. Dessen Verlauf ist in Abbildung 6.40 dargestellt. Mit der Aktivierung

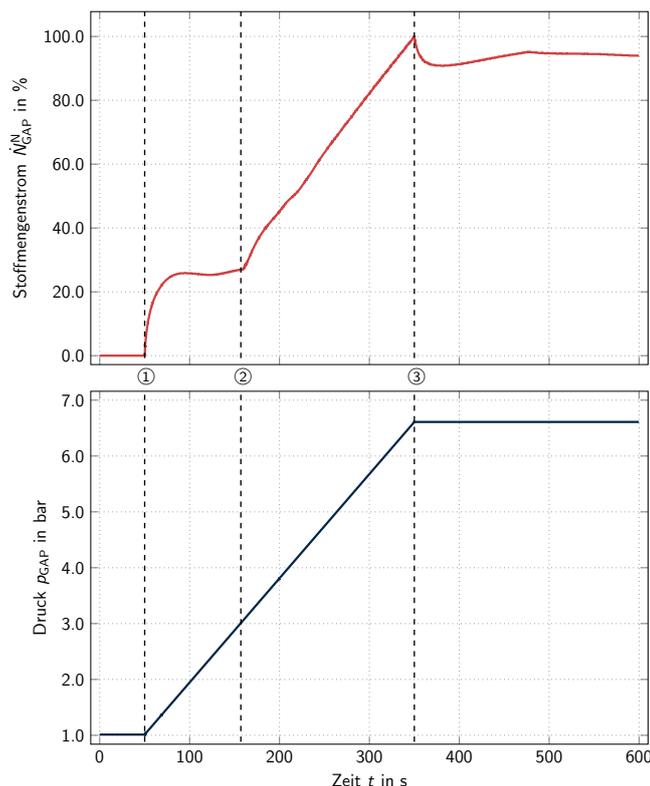


Abbildung 6.39: Zeitliche Verläufe des GAP-Stoffmengenstroms (oben) und des Austrittsdrucks am Hauptluftverdichter (unten)

des MC werden die beiden thermisch gekoppelten Rektifikationskolonnen der Linde Doppelkolonne wieder in Betrieb genommen. Durch die steigende Menge an flüssigem Rücklauf verändert sich der Strömungswiderstand der kolonneninternen Gasströmungen, was wiederum das Verhalten des GAP-Stoffmengenstroms beeinflusst.

Neben dem Verlauf des übertragenen Wärmestroms \dot{Q}_{MC} des MC (oben) sind in Abbildung 6.40 die Verläufe der Tau- $T_{\text{dew,MC,PC}}$ und Siedetemperatur $T_{\text{bub,MC,LPC}}$ des N_2 -reichen Gases am Kopf der HPC bei erhöhtem Druck sowie der O_2 -reichen Flüssigkeit im Sumpf der LPC (MC) dargestellt.

Verglichen mit der Siedetemperatur des LOX zeigt der Verlauf der Tautemperatur des N_2 -reichen Gases am Kopf der HPC während des Wiederanfahrens größere Veränderungen, hervorgerufen durch die Erhöhung des Druckniveaus auf den Betriebsdruck der Kolonne. Nach $t = 350$ s werden die Verläufe der Temperaturen hauptsächlich durch ablaufende Konzentrationsverschiebungen in den Kolonnen beeinflusst.

Um die Zeit zu bestimmen, die notwendig ist, um die geforderte Produktqualität und Quantität zu erreichen, müssen die in Abbildung 6.41 dargestellten Verläufe des GOX-Stoffmengenstroms \dot{N}_{GOX} sowie des O_2 -Stoffmengenanteils x_{O_2} genauer betrachtet werden.

Die geforderte Produktmenge wird bereits kurz nach dem Druckaufbau bei $t \approx 383$ s erreicht. Da die Basisregelung der Anlage in dem Zeitraum von $t = 50 - 350$ s nicht aktiv ist, wird der Verlauf durch den Zustand auf der Verdampferseite des

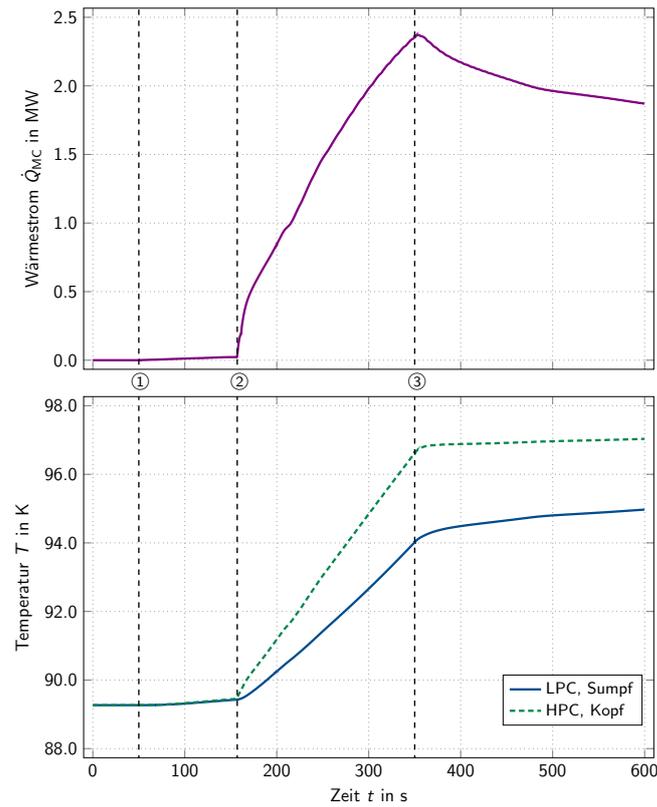


Abbildung 6.40: Zeitlicher Verlauf des übertragenen Wärmestroms des MC (oben) sowie der Tau- und Siedetemperaturen im MC (unten)

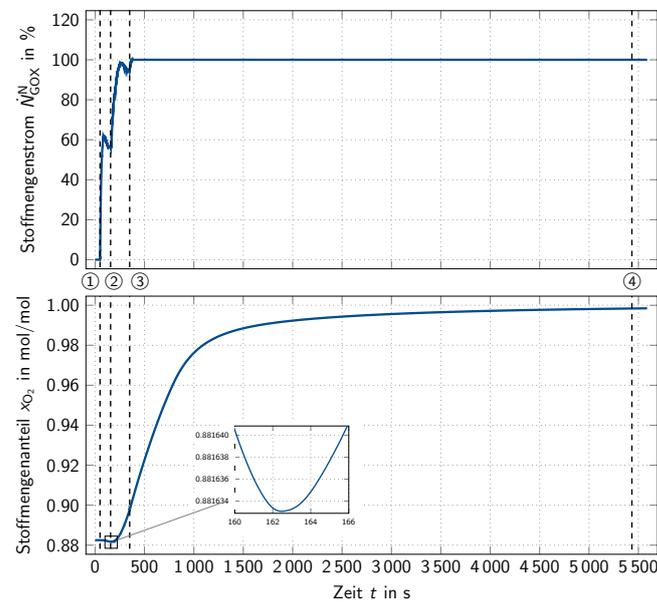


Abbildung 6.41: Zeitliche Verläufe des GOX-Stoffmengenstroms (oben) und des O₂-Stoffmengenanteils der Flüssigkeit auf der Verdampferseite des SCR (unten)

SCR bestimmt, welcher hauptsächlich vom Druck $p_{SCR,LOX}$ und dem Ventilhub des

GOX-Produktventils $VP4$ $h_{v,VP4}$ beeinflusst wird. Das Ventil $VP4$ wird während des Wiederanfahrens manuell geöffnet.

Der Druck $p_{SCR,LOX}$ im SCR wird hingegen maßgeblich durch den übertragenen Wärmestrom \dot{Q}_{SCR} und der Menge an flüssigem Holdup bestimmt, welche anfänglich abnimmt, da die Einspeisung in den SCR (siehe Abbildung 6.31 LOX SCR) ebenfalls erst manuell über die Zeit erhöht wird. Der Verlauf von \dot{Q}_{SCR} ist weiter abhängig vom O_2 -Stoffmengenanteil der Flüssigkeit im SCR. Der sigmoidale Verlauf des GOX-Stoffmengenstroms vor ② und ③ resultiert aus dem fortlaufenden Druckaufbau und der Veränderung des Ventilhubes von $VP4$.

Nachdem der Druckaufbau bei $t = 350\text{ s}$ abgeschlossen ist, wird die Basisregelung aktiviert. Dies erklärt die Verzögerung bis zum Erreichen der geforderten GOX-Produktmenge bei $t \approx 383\text{ s}$.

Im Verlauf des O_2 -Stoffmengenanteils $x_{O_2,SCR}$ kommt es initial zu einem Absinken (①). Nachdem der MC wieder aktiv ist, steigt der Verlauf von $x_{O_2,LOX}$ mit einer Verzögerung von 5.5 s ab $t \approx 162.5\text{ s}$ (siehe Abbildung 6.41 unten) wieder an, da in den Kolonnen eine Trennung stattfindet. Nach $t = 5434\text{ s} \approx 1.5\text{ h}$ (④) kann die gewünschte Menge an GOX-Produkt mit der geforderten Reinheit produziert werden.

Bis ein mathematisch stationärer Zustand erreicht wird, d.h. die Veränderungsrate aller Größen vollständig gegen null konvergiert ist, dauert es jedoch $t \approx 120\,000\text{ s} \approx 33.3\text{ h}$. Dieser lange Zeitraum ist auf die Konzentrationsverschiebungen in der LPC zurückzuführen, welche in einem Wechselspiel mit der Kolonnenfluidodynamik stehen. Die kolonneninternen Gas- und Flüssigströme sind in Abbildung 6.42 über einen Zeitraum von 1200 s dargestellt.

Als Erstes strömt Flüssigkeit in die C-Sektion unterhalb der CLOP-Einspeisung. Die überschüssige Flüssigkeit, welche sich während des Anlagenstopps im Sumpf der HPC gesammelt hat, wird dort durch die Öffnung des Ventils $VI2$ ab $t = 50\text{ s}$ (①) in die LPC gespeist. Mit der Aktivierung des MC bei $t = 157\text{ s}$ (②) wird wieder flüssiger Rücklauf für beide Kolonnen erzeugt, da das Ventil $VI3$ während des Anlagenstopps komplett geöffnet wurde. Die Verläufe des Ventilhubes von $VI2$ und $VI3$ sind eine Erklärung für den langsamen Anstieg der Flüssigströmung in der C-Sektion, da die Flüssigkeit bevorzugt über den LIN-Weg in die LPC gespeist wird (A-Sektion). Mit einer entsprechenden zeitlichen Verzögerung ist auch Flüssigkeit in der B- und D-Sektion zu erkennen. Nach $t = 350\text{ s}$ werden die Verläufe der Flüssigströmung durch die Basisregelung bestimmt.

Bezüglich der kolonneninternen Gasströmung (siehe Abbildung 6.42 unten) kann aufgrund des Turbinenstroms zunächst ein Anstieg der Verläufe der C- und B-Sektion beobachtet werden. Wie in der Studie zur Untersuchung des Anlagenstopps erkannt wurde, strömt Gas präferiert durch den CGN-Strömungsweg. Daher kann in der A-Sektion mit Beginn des Wiederanfahrens bei $t = 50\text{ s}$ eine Strömungsumkehr erkannt werden. Darüber hinaus ist bis zur Aktivierung des MC (②) eine geringe Strömungsumkehr in der D-Sektion ersichtlich, verbunden mit dem dortigen Druckaufbau. Mit der Aktivierung des MC steigt die Gasströmung durch die LPC generell an.

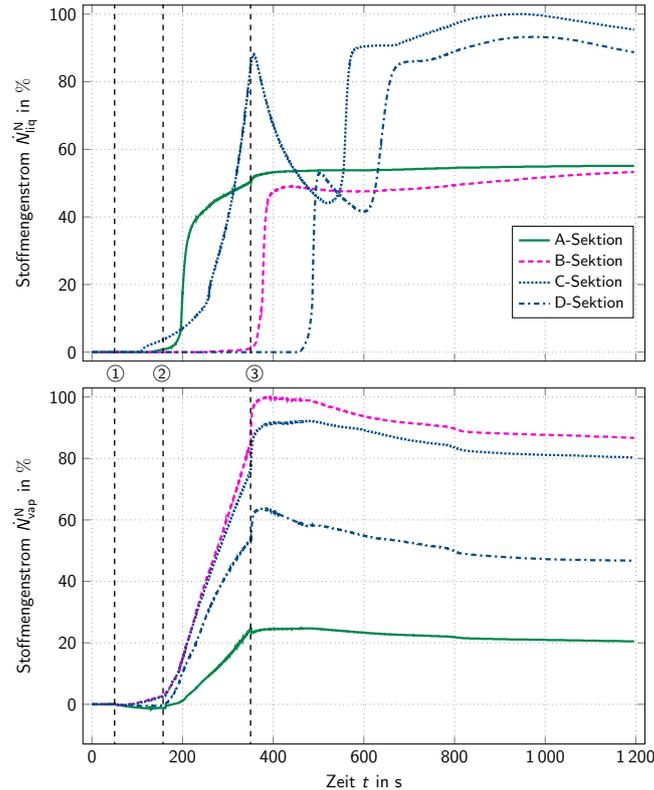


Abbildung 6.42: Zeitliche Verläufe der normierten kolonneninternen Flüssig- (oben) und Gasströmungen (unten)

Die Absolutwerte der Verläufe der kolonneninternen Gasströmungen sind ein Resultat aus den entsprechenden Widerstandsbeiwerten der jeweiligen Sektionen. Bis das finale Konzentrationsprofil der LPC bei $t \approx 33.3$ h erreicht ist, können minimale Änderungen der Verläufe der Gasströmung beobachtet werden. Da diese marginal sind, ist der gesamte Zeitraum bis $t \approx 33.3$ h nicht in der Abbildung dargestellt.

Das dargestellte Szenario zeigt, dass die Anforderungen an das GOX-Produkt hinsichtlich Menge und Reinheit bereits nach etwa 1.5 h erreicht werden können. Dieser Zeitraum ist allerdings abhängig vom initialen Zustand. In diesem Fall wird die Anlage kurz nach dem Erreichen des kalten Stand-by-Zustands wieder hochgefahren. Das bedeutet, dass der kalte Teil der Anlage noch kryogene Temperaturen aufweist und annähernd die gesamte Flüssigkeit für den Wiederanfahrvorgang zur Verfügung steht.

Der Schlüssel für ein schnelles Wiederanfahren aus dem kalten Anlagenzustand ist es, den MC bedeckt zu halten, um so möglichst schnell einen Gegenstrombetrieb in der Linde Doppelkolonne zu etablieren und eine Trennwirkung zu erzielen. Hier ist der MC-Füllstand nach dem kalten Stand-by bei 193 %, was das schnelle Hochfahren der Kolonnen ermöglicht.

Wenn die ASU nach dem Anlagenstillstand über längere Zeit nicht wieder hochgefahren wird, beginnt die Anlage sich aufzuwärmen und die gesammelten kryogenen Flüssigkeiten verdampfen. Weiter muss die Flüssigkeit aus Sicherheitsaspekten nach einer gewissen Zeit aus dem MC abgelassen werden. In diesem Fall muss die Exzessflüssigkeit in den

weiteren Behältern wie beispielsweise dem Sumpf der HPC zügig in den MC gefördert werden.

Das zeitintensive Einstellen der Konzentrationsprofile der Linde Doppelkolonne hat in dem präsentierten Szenario keine Auswirkungen auf die Reinheit des GOX-Produkts. Jedoch besteht hier Optimierungspotential, um den Wiederaufstartvorgang schneller durchführen zu können und so die Anlagenflexibilität weiter zu erhöhen.

Die detaillierte Betrachtung dieses Szenarios liefert Aussagen über die benötigte Zeit einer ASU, um die geforderten Produkte nach einem Anlagenstopp liefern zu können. Diesen Zeitraum in Abhängigkeit der Stillstandszeit zuverlässig bestimmen zu können, liefert einen großen Mehrwert für die Güte des DSM einer flexibel betriebenen ASU.

6.3.3 Zusammenfassung und Fazit

Diese Studie verdeutlicht, dass industriell relevante Extremszenarien für den flexiblen Betrieb einer ASU ohne Ar-Abtrennung realitätsgetreu simuliert werden können. Die präsentierten Ergebnisse sind im Einklang mit Erfahrungswerten von Experten bei Linde. Sowohl beim Anlagenstillstand als auch beim Wiederaufstart aus dem kalten Anlagenzustand handelt es sich um numerisch hoch anspruchsvolle Szenarien, die Phänomene wie Nullströmung, Strömungsumkehr und Phasenwechsel beinhalten. Die signifikanten Unterschiede in der benötigten CPU-Zeit sind ein Indikator dafür, dass der Anlagenstillstand das numerisch anspruchsvollere Szenario darstellt. Der Fokus der Entwicklung der virtuellen ASU ist zunächst auf Machbarkeit und Stabilität gelegt, um *in silico* Studien mittels DT zu ermöglichen, die den gesamten Betriebsbereich einer ASU abdecken. Zukünftige Arbeitspakete können darauf abzielen, die benötigte Rechenzeit zu minimieren, um so Echtzeitanwendungen zu ermöglichen.

Um den Anlagenstopp und das Wiederaufstart aus dem kalten Anlagenzustand weiter zu verbessern, ist die höchste Modellgranularität der virtuellen ASU notwendig, um diese Szenarien physikalisch akkurat simulieren zu können und so potentielle Engpässe aufzudecken. Da die Dauer des Wiederaufstartvorgangs komplett von dessen Initialzustand abhängig ist, kann der maximale Mehrwert einer Optimierung nur dann erreicht werden, wenn auch dieser Anfangszustand durch die Simulation eines Anlagenstopps zuverlässig vorhergesagt werden kann.

Weiter liefert die detaillierte Analyse des Anlagenstillstands eine weitere Notwendigkeit für den hohen Modellierungsaufwand. Die *in silico* Analyse deckt hier ein Gefahrenpotential durch entstehende Unterdruckbedingungen im SCR auf. Diese Information kann nun beim DSM berücksichtigt und somit Risiken für die Anlage minimiert werden.

Die benötigte Zeit für das Wiederaufstart aus dem kalten Anlagenzustand ist eine Schlüsselgröße für den flexiblen Anlagenbetrieb. Eine genaue Kenntnis dieser Größe erlaubt eine akkurate ökonomische Evaluation, ab welchem Energiepreisniveau sich ein Anlagenstillstand lohnt.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Dissertation wurde ein DT-Konzept für eine verfahrenstechnische Anlage am Beispiel einer ASU entwickelt. Basierend auf bestehenden Definitionen des DT mit Anwendungen in anderen Industriezweigen handelt es sich um ein computergestütztes Anlagenmodell, welches mehrere Kriterien erfüllt. Ein Anspruch ist die Etablierung eines bidirektionalen Datentransfers zwischen Modell und realer Anlage. Dazu wird die moderne Softwareinfrastruktur SMI@LE verwendet, welche in der Lage ist, diese Kopplung inhärent herzustellen. Ein weiteres Kriterium ist die Möglichkeit, den gesamten Lebenszyklus der Anlage abbilden und verbessern zu können, was konzeptionell durch die adaptive Modellgranularität der entwickelten Simulationsmodelle gewährleistet wird. Die während der einzelnen Phasen des Anlagenlebenszyklus gesammelten Daten werden dabei über die Grenzen der unterschiedlichen Abschnitte hinaus genutzt.

Die Grundlage des DT ist ein Simulationsmodell der betrachteten Anlage, die virtuelle ASU. Das bei der Entwicklung berücksichtigte modular-hierarchische Modellierungsparadigma ermöglicht die Variation der Modellgranularität, um für jede Aufgabe während des Lebenszyklus die benötigte Rechenzeit zu minimieren. Bei der Entwicklung wird ein top-down-Ansatz verfolgt. Hier werden basierend auf einem druckgetriebenen Simulationssatz zunächst hochdetaillierte dynamische Modelle der einzelnen Grundoperationen einer ASU entwickelt, um den Anlagenbetrieb mit hoher Genauigkeit abbilden zu können. Der Fokus liegt hierbei auf der Entwicklung eines generischen Kolonnenmodells. Dabei handelt es sich um eine Weiterentwicklung des Modells von WUNDERLICH (2018) und dessen Erweiterung für die Simulation von Siebbodenkolonnen. Darüber hinaus wurde das in RÖSSLER ET AL. (2022) vorgestellte Wärmeübertragermodell verwendet, um den hohen Grad an Wärmeintegration einer ASU akkurat darzustellen. Zusätzlich werden druckgetriebene Modelle der benötigten Maschinen und Ventile sowie ein Modell eines PI-Reglers entwickelt.

Das entwickelte DT-Konzept wird für drei unterschiedliche ASU-Topologien mit entsprechender Modellgranularität angewendet. Bei der ersten Anwendung trägt der DT dazu bei, die Energieeffizienz der kryogenen Luftzerlegung weiter zu erhöhen. Dazu wird ein DT einer neuartigen ASU-Topologie mit thermisch und mechanisch integrierter Argon-Abtrennungskolonnen, welche gegenüber einer konventionellen Argon-Abtrennungskolonnen Einsparungen im Energieverbrauch mit sich bringt, implementiert und für die Entwicklung eines zuverlässigen Regelungskonzepts dieser Anlage verwendet. Da ein zuverlässiger Anlagenbetrieb über die Realisierung der Anlagentopologie entscheidet, ist diese Anwendung in die Designphase (*Stufe 3 – Dynamisches Design*) einzuordnen. Dazu werden, basierend auf einer vereinfachten Auslegung des Schlüsselequipments,

vereinfachte Modelle für die Wärmeübertrager (konstante Wärmeübergangskoeffizienten) sowie lineare pressure-flow-Zusammenhänge anstelle von Ventilen verwendet.

Die zwei weiteren DTs leisten einen Beitrag zur Erhöhung der Lastflexibilität der jeweils betrachteten ASU. Dabei wird in beiden Fällen die höchste Modellgranularität verwendet. Mit Hilfe eines DT einer ASU mit Ar-Produktion, wie typischerweise in der Industrie eingesetzt, werden detaillierte Analysen von Lastwechselvorgängen durchgeführt. Daraus wird das SLM-Konzept abgeleitet, welches eine bedeutende Erhöhung der Lastwechselgeschwindigkeit erlaubt. Diese Methode kann auf entsprechende Bestandsanlagen angewendet werden. Zusätzlich wird die Notwendigkeit der Anwendung des DT als Softsensor verdeutlicht, da das SLM-Konzept nicht messbare Größen als Indikatoren verwendet. Diese Anwendung ist in die Betriebsphase (*Stufe 5 – Betriebsoptimierung*) einzuordnen.

Bei der letzten Anwendung wird ein DT einer ASU ohne Ar-Produktion implementiert, um industriell relevante Extremszenarien des Anlagenbetriebs detailliert zu analysieren. Dabei werden ein plötzlicher Anlagenstillstand sowie ein darauffolgendes Wiederanfahren aus dem kalten Anlagenzustand betrachtet. Durch die in silico Analyse ist es möglich, potentielle Gefahrensituationen beim Abschalten der Anlage zu identifizieren und in einer Realanlage zu vermeiden. Die Betrachtung des Anfahrens aus dem kalten Anlagenzustand quantifiziert u.a. die benötigte Wiederanfahrzeit, die eine essentielle Information für die Betriebsoptimierung einer solchen Anlage im Rahmen des DSM darstellt. Bezüglich des Lebenszyklus sind diese Anwendungen in die Betriebsphase in *Stufe 4 – Inbetriebnahme* sowie *Stufe 5 – Betriebsoptimierung* einzuordnen.

Der DT beinhaltet bereits in dieser Ausprägung ein vielfältiges Potential, um das Anlagendesign bzw. den Betrieb weiter zu verbessern. Durch die Betrachtung von weiteren Anlagentypen sowie Betriebsfällen können die verwendeten Modelle breiter validiert werden. Ein ausführlicher Ist-Soll-Vergleich von unterschiedlichen Anlagentypen kann auf der einen Seite dazu genutzt werden, um die Güte der verwendeten Modelle zu erhöhen. Dazu eignet sich die Verwendung von Methoden, basierend auf künstlicher Intelligenz, die bei der Betrachtung von großen Datenmengen gezielt Abweichungen von beispielsweise Differenzdruckmessungen der Kolonnen gegenüber der Vorhersage der implementierten Korrelationen findet und etwaige Einflussgrößen identifiziert.

Auf der anderen Seite können Engpässe im Betrieb von bestehenden Anlagen identifiziert und behoben werden. Besonderes von Interesse ist hier die Betrachtung von ASUs mit einer hohen Menge an flüssigen Produkten, da diese das höchste Flexibilitätspotential aufweisen. Für diese Anlagentopologien kann beispielsweise der potentielle Mehrwert des SLM-Konzepts untersucht werden.

Weiter kann der DT dafür genutzt werden, in silico Regelstrecken für die Entwicklung von APC-Strategien zur Verfügung zu stellen. Dies erlaubt die Kombination von zwei Entwicklungssträngen des Kopernikus-Projekts SynErgie FlexASU, da die vom Projektpartner AVT.SVT entwickelten Regelungsstrategien bereits in aussagekräftigen Simulationsstudien getestet werden können. Dadurch kann die Implementierung auf einer Realanlage vereinfacht und beschleunigt werden.

Eine weitere Anwendung im Bezug auf Anlagenregelung ist die Verwendung des DT zu Trainingszwecken für eine übergeordnete Regelung, basierend auf künstlicher Intelligenz. Im Detail wird hier ein MPC-Ansatz durch maschinelles Lernen ersetzt. Der DT ermöglicht dabei die Betrachtung des gesamten Betriebsbereichs einer ASU und bietet eine Ergänzung des Lernbereichs zusätzlich zu vorhandenen Betriebsdaten. Erste Studien dazu sind KRESPACH ET AL. (2022) zu entnehmen.

Zusätzlich gilt es, die Modelle der virtuellen ASU stetig weiterzuentwickeln. Ein essentieller Aspekt ist die Verwendung des DT online parallel zur realen Anlage. Dazu muss der Anspruch der Teilmodelle an die Echtzeitfähigkeit erfüllt werden. Eine Möglichkeit ist, die heutzutage zur Verfügung stehende und kontinuierlich steigende Rechenleistung durch die Möglichkeit der Parallelisierung auf Programmebene auszunutzen. Dies erfordert eine Formulierung der einzelnen Modelle der virtuellen ASU, die dazu führt, dass möglichst viele Teilprobleme entstehen, die gleichzeitig gelöst werden können, ohne bestehende Abhängigkeiten zu verletzen. Dadurch kann das Lösungsverfahren der dynamischen Simulation auf mehrere Kerne einer CPU verteilt werden und eine Reduktion der Rechenzeit hervorrufen. Weitere Voraussetzungen dafür sind die Verwendung von entsprechenden Systeminfrastrukturen und Lösungsalgorithmen, die diese Möglichkeiten beinhalten. Darüber hinaus können analog zur Entwicklung und Implementierung der Dynamic Edmister Method nach KENDER ET AL. (2023) weitere Modellreduktionsansätze für Rektifikationskolonnen in das generische Kolonnenmodell integriert werden. Weiter gilt es zu untersuchen, ob das Wärmeübertragermodell nach RÖSSLER ET AL. (2022) entsprechend reduziert werden kann. Zudem ist es notwendig, die verwendeten Modelle für eine robuste stationäre Nutzung zu erweitern. Somit kann der DT effektiv während der stationären Designphase der Anlage genutzt werden. Dadurch muss beim Anlagendesign nicht mehr auf heterogene Modelle für das Prozess- sowie das Equipmentdesign zurückgegriffen werden, wodurch der Arbeitsablauf während der Designphase vereinfacht wird.

Zur Beschleunigung der Energiewende gilt es, über die kryogenen Luftzerlegung hinaus die laufenden Flexibilisierungsmaßnahmen von verfahrenstechnischen Prozessen zu intensivieren, um so den Betrieb chemischer Anlagen optimal an die Verfügbarkeit von erneuerbaren Energien anpassen zu können. Eine große Herausforderung ist neben einer volatilen Energieverfügbarkeit auch eine variable Verfügbarkeit von Grundstoffen, die in der chemischen Industrie verarbeitet werden. Ein wichtiges Beispiel hier ist die Berücksichtigung von grünem Wasserstoff. Neben der fluktuierenden Herstellung durch die Elektrolyse ist es auch von großer Wichtigkeit, dass nachgeschaltete Prozesse wie z.B. die Produktion von Ammoniak oder Methanol auf diese Produktionsschwankungen einstellen können. Für die zahlreichen Forschungsgruppen, die sich mit dieser Thematik befassen, kann die DT-Technologie ebenfalls hilfreich sein, um Detailstudien zur Anlagenflexibilität durchführen zu können.

Aufgrund der im Rahmen dieser Arbeit bereits präsentierten und potentiellen weiteren Anwendungen entwickelt sich der DT entsprechend der Wahl des Titels: „Der digitale Zwilling - Schlüsseltechnologie zur Flexibilisierung von Luftzerlegungsanlagen“ zu

einer vielversprechenden Technologie, die es erlaubt, die Flexibilität von chemischen Produktionsanlagen zu erhöhen und somit einen Teil zur Energiewende beizutragen.

A Anhang

Nachfolgend werden zusätzliche Angaben gemacht, um die Nachvollziehbarkeit bei der Erstellung der Simulationsmodelle sowie der Reproduktion der Ergebnisse zu erleichtern. Dazu werden die gewählten Parameter K_P und T_N der Regelkreise der Basisregelung der in den Abschnitten 6.1 und 6.2 vorgestellten Simulationsstudien tabellarisch dargestellt.

In Tabelle A.1 wird Tabelle 6.1 um die Parametrierung der Regelkreise erweitert. Dabei werden die Parameter für alle Regelungskonzepte der IARC-Belastung aufgelistet.

Tabelle A.1: Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit IARC nach Abbildung 6.1 inklusive Parametrierung

Bezeichnung	Art	Funktionsbeschreibung	K_P	T_N in s
c.1	TC	Regelung der IARC-Belastung	6.800	500.0
c.1	PDC	Regelung der IARC-Belastung	47.38	8.950
c.1a	LC	Regelung der IARC-Belastung (Kaskade)	5.000	3600
c.1b	FC	Regelung der IARC-Belastung (Kaskade)	1.000	3600
c.1c	FC	Regelung der IARC-Belastung (Ar-Abgas)	3.000	11.00
c.2a	TC	Regelung der Temperatur auf der Verdampfer-	23.27	149.5
c.2b	FC	seite des FFC durch die Luftmenge	1.000	20.00
c.3	FC	Regelung der Menge an Hochdruckluft	1.000	60.00
c.4	LC	Regelung des MC-Füllstands	3.000	$3.6 \cdot 10^5$
c.5	FC	Regelung der Flüssigluftaufteilung	1.000	30.00
c.6	LC	Regelung des HPC-Füllstands	-7.500	1800
c.7	TC	Regelung der Temperatur der HPC	566.0	250.0
c.8	PC	Regelung des LPC-Kopfdrucks	-0.086	23.30
c.9	FC	Regelung des Durchflusses des PGAN-Stroms	1.000	30.00
c.10	FC	Regelung des Durchflusses des GANIC-Stroms	1.000	30.00
c.11	FC	Regelung des Durchflusses des GOXIC-Stroms	1.000	30.00

Tabelle A.2 erweitert Tabelle 6.3 um die Parametrierung der Regelkreise.

Tabelle A.2: Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit Ar-Produktion nach Abbildung 6.14 inklusive Parametrierung

Bezeichnung	Art	Funktionsbeschreibung	K_P	T_N in s
c.1	FC	Regelung der Luftmenge	5.00	5.00
c.2a	LC	Regelung des MC-Füllstands	26.5	$5.0 \cdot 10^5$
c.2b	FC	als Trimm-Kaskadenregelung	1.00	10.0
c.3	LC	Regelung des HPC-Füllstands	-22.5	960
c.4a	AC	Regelung der N_2 -Reinheit am Kopf	15.2	720
c.4b	FC	der HPC als Trimm-Kaskadenregelung	1.00	10.0
c.5	PC	Regelung des LPC-Kopfdrucks	-1.70	20.0
c.6	FC	Regelung des Durchflusses des LOX-Stroms	1.00	100
c.7	FC	Regelung des Durchflusses des GOX-Stroms	2.00	5.00
c.8	FC	Regelung des Durchflusses des GAN-Stroms	1.00	100
c.9	FC	Regelung des Durchflusses des PGAN-Stroms	1.00	100
c.10	LC	Regelung des CAC_1 -Füllstands	-5.00	10.0
c.11	LC	Regelung des CAC_2 Füllstands	-5.00	10.0
c.12	FC	Regelung der Menge an CGO über den Druck in ⑫	1.00	10.5
c.13	FC	Regelung der Menge an Flüssigkeit aus ⑫	1.00	100
c.14	FC	Regelung der Menge an CGAR	3.00	10.0
c.15	LC	Regelung des Füllstands von ⑫	4.00	90.0
c.16	PC	Regelung des Drucks von ⑭	-1.00	50.0
c.17	LC	Regelung des Füllstands von ⑭	-4.90	240
c.18	PDC	Regelung des Differenzdrucks der PAC	-1.70	20.0
c.19	PC	Regelung des PAC-Kopfdrucks	-3.20	30.0
c.20	LC	Regelung des PAC-Sumpffüllstands	-0.40	120

Tabellenverzeichnis

3.1	Darstellung der molaren Zusammensetzung von trockener, gereinigter Luft und der Siedepunkte ⁽¹⁾ Gefrierpunkte) der Komponenten bei $p = 1.013$ bar nach MOLL (2014)	6
6.1	Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit IARC nach Abb. 6.1	93
6.2	Integrale Fehlerkriterien während der PGAN-Reduktion	107
6.3	Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit Ar-Produktion nach Abb. 6.14	112
6.4	Reinheitsanforderungen an die (Haupt-) Produkte der ASU-Topologie nach Abb. 6.14	115
6.5	Charakteristische Ereignisse während eines Anlagenstillstands	144
6.6	Charakteristische Ereignisse beim Wiederanfahren aus dem kalten Anlagenzustand	154
A.1	Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit IARC nach Abb. 6.1 inklusive Parametrierung	165
A.2	Regelkreise der Basisregelung einer ASU mit Ar-Produktion nach Abb. 6.14 inklusive Parametrierung	166

Abbildungsverzeichnis

3.1	Darstellung einer typischen ASU der Firma Linde inkl. Hauptbestandteile nach KENDER ET AL. (2021b)	7
3.2	Darstellung eines Verfahrensfließbilds einer ASU analog zu MOLL (2014)	8
3.3	Darstellung der Dampfdruckkurven der Hauptkomponenten von Luft: N ₂ , Ar und O ₂	10
3.4	Schematische Darstellung der Flexibilisierung einer ASU nach WUNDERLICH (2018)	11
3.5	Technologien zur Energiespeicherung in einer ASU nach WUNDERLICH ET AL. (2015)	12
3.6	Schematische Darstellung der Randbedingungen, der Anforderungen an die Lastflexibilität sowie der benötigten Simulationsmodelle für die unterschiedlichen Aspekte des DSM, [1] aus KENDER ET AL. (2021b), [2] aus KENDER ET AL. (2021a), [3] aus HAIDER ET AL. (2021) und [4] aus OBERMEIER ET AL. (2019)	14
3.7	Schematische Darstellung der äußeren Einflüsse auf das DSM, [1] aus OBERMEIER ET AL. (2019) und [2] aus KENDER ET AL. (2021b)	17
3.8	Automatisierungspyramide nach ISA-S95 Standard am Beispiel einer ASU [ECKER 08.04.2022] analog zu HARJUNKOSKI ET AL. (2014) . . .	19
3.9	Energieoptimales Betriebsprofil für eine ASU mit LIN- und LOX-Produktion nach OBERMEIER ET AL. (2019). Darstellung des Strompreises (oben), des optimierten Energieverbrauchs (Mitte) und der entsprechenden Produktionsraten (unten) für den Januar 2016	21
4.1	Schematische Darstellung des DT-Konzepts einer ASU nach KENDER ET AL. (2021a)	38
4.2	Schematische Darstellung eines typischen Lebenszyklus einer ASU nach KENDER ET AL. (2023)	39
4.3	Verfügbare Informationen der LPC während des Anlagenbetriebs: DT genutzt als Softsensor (links) verglichen mit einer konventionellen Instrumentierung (rechts) nach KENDER ET AL. (2022b)	42
4.4	Schematischer Aufbau der virtuellen ASU nach KENDER ET AL. (2021a)	44
4.5	Minimalbeispiel für die Anwendung des druckgetriebenen Ansatzes nach THOMAS ET AL. (2020) analog zu KENDER ET AL. (2021a)	47
4.6	Interpretation einer beispielhaften ASU als Drucknetzwerk nach KENDER ET AL. (2021a)	49
4.7	Schematische Darstellung einer Siebbodenkolonne mit einem Ablaufschacht nach STICHLMAIR ET AL. (2021)	59

4.8	Schematische Darstellung der Bilanzgleichungen des Wärmeübertragermodells nach RÖSSLER ET AL. (2022)	64
4.9	Blockschaltbild eines geschlossenen Regelkreises nach SEBORG ET AL. (2017)	64
4.10	Blockschaltbild eines PI-Reglers mit der Back Calculation Methode nach ÅSTRÖM & HÄGGLUND (2006)	66
5.1	Typischer Ablauf für die Erstellung, Integration und Anwendung eines SMI@LE-Modells in herkömmliche Software für Prozesssimulation sowie deren Kopplung an eine Realanlage nach KENDER ET AL. (2018)	68
5.2	Schematische Darstellung der Modelle zur Förderung und Transport von Fluiden in Kombination mit dem druckgetriebenen Ansatz nach THOMAS ET AL. (2020)	70
5.3	Verschaltung eines Pumpenmodells in einem pressure-flow-Netzwerk	72
5.4	Schematische Darstellung des modular-hierarchischen Aufbaus des generischen Kolonnenmodells nach KENDER ET AL. (2021a)	74
5.5	Berechnungsschema für die Anwendung von Siebbodenkorrelationen mit dem druckgetriebenen Ansatz nach KENDER ET AL. (2021a)	75
5.6	a) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des trockenen Druckverlusts Δp_{dry}^N über den normierten F -Faktor F_h^N b) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des Druckverlusts Δp_{liq}^N durch die Flüssigkeit über den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N	77
5.7	a) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des normierten Druckverlusts $\Delta p_{\text{tray,reg}}^N$ eines Siebbodens über den normierten F -Faktor F_h^N bei einem konstanten normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N der ablaufenden Flüssigkeit. b) Regularisierter normierter Druckverlust $\Delta p_{\text{tray,reg}}^N$ eines Siebbodens über den normierten F -Faktor F_h^N und den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N	79
5.8	a) Regularisierte und nicht-regularisierte Verläufe des normierten flüssigen Holdups $h_{\text{tray,reg}}^N$ eines Siebbodens über den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N der ablaufenden Flüssigkeit bei einem konstanten F -Faktor F_h^N . b) Regularisierter normierter flüssiger Holdup $h_{\text{tray,reg}}^N$ über den normierten F -Faktor F_h^N und den normierten Volumenstrom \dot{V}_{liq}^N	81
5.9	Schematische Darstellung einer PFHE-Konfiguration des modular-hierarchischen Wärmeübertragermodells nach RÖSSLER ET AL. (2022)	82
6.1	Darstellung des Verfahrensfließbilds einer ASU mit IARC inklusive Basisregelung entsprechend Tabelle 6.1 des in dieser Studie erstellten DT	87
6.2	Vergleich der unterschiedlichen Konzepte für eine ARC. Links das IARC-Konzept und rechts das CARC-Konzept	89
6.3	Vergleich der verwendeten Regelungskonzepte für die IARC. Von links nach rechts: TC- LC- und PDC-Konzept	90
6.4	Konzentrationsprofil der Gasphase innerhalb der LPC und IARC (DWC) dargestellt als Dreiecksdiagramm	94

6.5	Einfluss der Reduktion der PGAN-Produktmenge auf die intensivierete LPC mit DWC-Abschnitt	94
6.6	Zeitliche Verläufe des normierten PGAN-Stoffmengenstroms (links oben), des normierten übertragenen Wärmestroms am MC (links unten), des normierten LPC-internen Gasstroms (rechts oben) sowie des normierten LPC-internen Flüssigstroms zum FFC (rechts unten) über einen Zeitraum von 12 000 s	96
6.7	Zeitliche Verläufe des normierten Ar-reichen Stoffmengenstroms, der an die Umgebung abgeblasen wird (oben) und des übertragenen Wärmestroms des FFC (unten) über einen Zeitraum von 12 000 s	99
6.8	Zeitliche Verläufe der treibenden Temperaturdifferenz (oben) und der Tau- sowie Siedetemperaturen des CGAR- und CLO-Stroms (unten) über einen Zeitraum von 12 000 s	100
6.9	Zeitliche Verläufe des normierten IARC-Kolonnendruckverlusts (oben) und der normierten Wärmeübertragungsfläche des FFC (unten) über einen Zeitraum von 12 000 s	101
6.10	Zeitliche Verläufe des normierten IARC-internen Gasstroms (links oben), des normierten IARC-internen Flüssigstroms (links unten), des O ₂ -Stoffmengenanteils des GOXIC-Produkts (rechts oben) und des Ar-Stoffmengenanteils des ATM-Stoffmengenstroms (rechts unten) über einen Zeitraum von 12 000 s	103
6.11	Zeitliche Verläufe der Ar- und O ₂ -Stoffmengenanteile des gasförmigen IARC-Eintrittstroms über einen Zeitraum von 35 000 s	105
6.12	Verteilung der Ar- und O ₂ -Stoffmengenanteile über die IARC-Höhe bei $t = 35\,000\text{ s}$	106
6.13	Normierte Verteilung der Druckverlustwerte der theoretischen Trennstufen der IARC über die Kolonnenhöhe bei $t = 35\,000\text{ s}$	106
6.14	Darstellung des Verfahrensfließbilds einer ASU mit Ar-Produktion inklusive Basisregelung entsprechend Tabelle 6.3 des in dieser Studie erstellten DT	111
6.15	Detaillierte Darstellung eines typischen Konzentrationsprofils der Gasphase der LPC einschließlich der Lage und Zusammensetzung des CGO-Stroms (Rohargonfeed) sowie der Ar-Abtrennung	113
6.16	Variation der normierten GOX-Produktmenge – Einfluss auf das GOX-Produkt (links) und auf das LAR-Produkt (rechts)	115
6.17	Variation der normierten GOX-Produktmenge – Einfluss auf das Konzentrationsprofil der Gasphase der CAC	116
6.18	Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten GOX- (links oben), Luft- (links unten), CGAR- (rechts oben) und CGO-Volumenstroms (rechts unten) für den turn-down	120
6.19	Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten HPC- (oben), CAC ₁ - (Mitte) und CAC ₂ -Kolonnenfüllstand (unten) für den turn-down	121

6.20	Zeitliche Verläufe der Antworten der O ₂ -Stoffmengenanteile der Kopfprodukte der LPC (GAN, oben), der HPC (PGAN, Mitte) und der CAC (CGAR, unten) für den turn-down	123
6.21	Zeitliche Verläufe der Antworten des MC-Füllstands (links oben), des O ₂ -Stoffmengenanteils des GOX-Produkts (links unten), des O ₂ - (rechts oben) und des N ₂ -Stoffmengenanteils des CGO-Stroms (rechts unten) für den turn-down	124
6.22	Zeitliche Verläufe der Antworten der Zusammensetzung Sumpfflüssigkeit der CAC ₁ O ₂ -Stoffmengenanteil (oben), Ar-Stoffmengenanteil (unten) für den turn-down	125
6.23	Zeitliche Verläufe der Antwort des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der LPC-Trennstufe oberhalb des MC für den turn-down	126
6.24	Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten GOX- (links oben), Luft- (links unten), LIN- (rechts oben) und CGO-Volumenstroms (rechts unten) für den turn-up	130
6.25	Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten LPC-Kopfdrucks (links oben) und Turbinenluftvolumenstroms (rechts oben) sowie der Antworten des normierten MC-Drucks (links unten) und normierten MC-Wärmestroms (rechts unten) für den turn-up	131
6.26	Zeitliche Verläufe der Sollwertänderungen sowie der Istwerte des normierten HPC- (oben), CAC ₁ - (Mitte) und CAC ₂ -Kolonnenfüllstand (unten) für den turn-up	133
6.27	Zeitliche Verläufe der Antworten der O ₂ -Stoffmengenanteile der Kopfprodukte der LPC (GAN, oben), der HPC (PGAN, Mitte) und der CAC (CGAR, unten) für den turn-up	134
6.28	Zeitliche Verläufe der Antworten des MC-Füllstands (links oben), des O ₂ -Stoffmengenanteils des GOX-Produkts (links unten), des O ₂ - (rechts oben) und des N ₂ -Stoffmengenanteils des CGO-Stroms (rechts unten) für den turn-up	135
6.29	Zeitliche Verläufe der Antworten des normierten N ₂ -Stoffmengenanteils des CGAR-Stroms (oben) und des normierten Wärmestroms des Rohargon-Verdampfer/Kondensators (unten) für den turn-up	138
6.30	Zeitliche Verläufe der Antwort des S-Faktors S_{Ar} von Ar auf der LPC-Trennstufe oberhalb des MC für den turn-up	139
6.31	Darstellung des Verfahrensfließbilds einer ASU ohne Ar-Produktion inklusive der Bezeichnungen für die Kolonnensektionen der LPC sowie Kennzeichnung von relevantem Equipment	142
6.32	Zeitliche Verläufe der Stoffmengenströme am warmen Ende des MHEX	145
6.33	Zeitliche Verläufe des übertragenen Wärmestroms des SCR (oben) und des SCR-Drucks auf der Verdampferseite (unten)	146
6.34	Zeitliche Verläufe der Druckniveaus (oben) sowie der normierten Stoffmengenströme der unterschiedlichen Luftströme (unten)	147
6.35	Kolonneninterne Gasströmung über die Höhe der HPC bei $t = 120$ s . .	148

6.36	Zeitlicher Verlauf des flüssigen Holdups der Kondensatorseite (GAP-Seite) des SCR (oben) sowie der Tau- und Siedetemperaturen auf beiden Seiten des SCR (unten)	150
6.37	Zeitliche Verläufe der normierten kolonneninternen Flüssig- (oben) und Gasströmungen (unten)	151
6.38	Zeitlicher Verlauf des relativen Ventilhubes des Ventils <i>VP3</i> (oben) und des Druckniveaus auf der Verdampferseite des SCR (unten)	153
6.39	Zeitliche Verläufe des GAP-Stoffmengenstroms (oben) und des Austrittsdrucks am Hauptluftverdichter (unten)	155
6.40	Zeitlicher Verlauf des übertragenen Wärmestroms des MC (oben) sowie der Tau- und Siedetemperaturen im MC (unten)	156
6.41	Zeitliche Verläufe des GOX-Stoffmengenstroms (oben) und des O ₂ -Stoffmengenanteils der Flüssigkeit auf der Verdampferseite des SCR (unten)	156
6.42	Zeitliche Verläufe der normierten kolonneninternen Flüssig- (oben) und Gasströmungen (unten)	158

Literatur

AMRIT ET AL. 2013

AMRIT, R.; RAWLINGS, J. B.; BIEGLER, L. T.: *Optimizing process economics online using model predictive control*. Computers & Chemical Engineering 58 (2013), S. 334–343. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2013.07.015.

ANSI/ISA 2013

ANSI/ISA: *Enterprise-Control System Integration - Part 3: Activity Models of Manufacturing Operations Management*. 2013. URL: <https://www.isa.org/products/ansi-isa-95-00-03-2013-enterprise-control-system-i>.

ARENS ET AL. 2018

ARENS, T.; HETTLICH, F.; KARPFINGER, C.; KOCKELKORN, U.; LICHTENEGGER, K.; STACHEL, H.: *Mathematik*. 4. Aufl. 2018. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2018. ISBN: 9783662567418. URL: <http://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:bsz:31-epflucht-1550998>.

ASPENTECH 25.08.2022

ASPENTECH: *Digital Twin Technology*. 25.08.2022. URL: <https://www.aspentech.com/en/apm-resources/digital-twin-technology>.

ÅSTRÖM & HÄGGLUND 2006

ÅSTRÖM, K. J.; HÄGGLUND, T.: *Advanced PID control*. Research Triangle Park, NC: ISA - The Instrumentation Systems and Automation Soc, 2006. ISBN: 1556179421.

AUSFELDER ET AL. 2015

AUSFELDER, F.; BEILMANN, C.; BERTAU, M.; BRÄUNINGER, S.; HEINZEL, A.; HOER, R.; KOCH, W.; MAHLENDORF, F.; METZELTHIN, A.; PEUCKERT, M.; PLASS, L.; RÄUCHLE, K.; REUTER, M.; SCHAUB, G.; SCHIEBAHN, S.; SCHWAB, E.; SCHÜTH, F.; STOLTEN, D.; TESSMER, G.; WAGEMANN, K.; ZIEGAHN, K.-F.: *Energiespeicherung als Element einer sicheren Energieversorgung*. Chemie Ingenieur Technik 87.1-2 (2015), S. 17–89. DOI: 10.1002/cite.201400183.

AVEVA 25.08.2022

AVEVA: *Digital Transformation: Digital Twin*. 25.08.2022. URL: <https://www.aveva.com/en/solutions/digital-transformation/digital-twin/>.

BARNES & LEVINE 2011

BARNES, F. S.; LEVINE, J. G., Hrsg.: *Large energy storage systems handbook*. Online-Ausg. Mechanical and Aerospace Engineering Ser. Boca Raton, Fla: CRC Press, 2011. ISBN: 9781420086010. URL: <http://site.ebrary.com/lib/alltitles/Doc?id=10456268>.

BELL 2012

BELL, B. M.: *CppAD: a package for C++ algorithmic differentiation*. Computational Infrastructure for Operations Research (2012).

BENALLOU ET AL. 1986

BENALLOU, A.; SEBORG; DA MELLICHAMP: *Dyanmic compartmental models for separation processes*. AIChE Journal 32.7 (1986), S. 1067–1078.

BIAN ET AL. 2005a

BIAN, S.; HENSON, M. A.; BELANGER, P.; MEGAN, L.: *Nonlinear state estimation and model predictive control of nitrogen purification columns*. Industrial & Engineering Chemistry Research 44.1 (2005), S. 153–167.

BIAN ET AL. 2005b

BIAN, S.; KHOWINIJ, S.; HENSON, M. A.; BELANGER, P.; MEGAN, L.: *Compartmental modeling of high purity air separation columns*. Computers & Chemical Engineering 29.10 (2005), S. 2096–2109. ISSN: 00981354.

BICHLER ET AL. 2022

BICHLER, M.; BUHL, H. U.; KNÖRR, J.; MALDONADO, F.; SCHOTT, P.; WALDHERR, S.; WEIBELZAHN, M.: *Electricity Markets in a Time of Change: A Call to Arms for Business Research*. Schmalenbach Journal of Business Research (2022). ISSN: 0341-2687. DOI: 10.1007/s41471-021-00126-4.

BMW_I 2020

BMW_I: *Die Energie der Zukunft – 8. Monitoring-Bericht*. Hrsg. von Bundesministerium für Wirtschaft und Energie (2020).

BMWK 2022

BMWK: *Das Erneuerbare-Energien-Gesetz: Stromeinspeisungsgesetz vom 7.12.1990*. Hrsg. von BUNDESMINISTERIUM FÜR WIRTSCHAFT UND KLIMASCHUTZ. Berlin, 2022. URL: https://www.erneuerbare-energien.de/EE/Redaktion/DE/Dossier/eeg.html?cms_docId=72462.

BUNDESNETZAGENTUR 2022

BUNDESNETZAGENTUR: *SMARD - Strommarktdaten*. Hrsg. von BUNDESNETZAGENTUR. 2022. URL: <https://www.smard.de/page/en/wiki-article/5884/5976>.

BURR 1993

BURR, P. S.: *The Design of Optimal Air Separation and Liquefaction Processes with the Optimism Equation-Oriented Simulator and its Application to On-Line and Off-Line Plant Optimization*. AIChE Symposium Series 89 294 (1993), S. 1–7.

CAO ET AL. 2016a

CAO, Y.; LE SWARTZ, C.; FLORES-CERRILLO, J.; MA, J.: *Dynamic modeling and collocation-based model reduction of cryogenic air separation units*. AIChE Journal 62.5 (2016), S. 1602–1615.

CAO ET AL. 2011

CAO, Y.; SWARTZ, C. L. E.; BALDEA, M.: *Design for dynamic performance: Application to an air separation unit*. American Control Conference (ACC), 2011. Piscataway, NJ: IEEE, 2011, S. 2683–2688. ISBN: 978-1-4577-0081-1. DOI: 10.1109/ACC.2011.5990942.

CAO ET AL. 2016b

CAO, Y.; SWARTZ, C. L. E.; FLORES-CERRILLO, J.: *Optimal Dynamic Operation of a High-Purity Air Separation Plant under Varying Market Conditions*. Industrial & Engineering Chemistry Research 55.37 (2016), S. 9956–9970. ISSN: 0888-5885. DOI: 10.1021/acs.iecr.6b02090.

CAO ET AL. 2015

CAO, Y.; SWARTZ, C. L.; BALDEA, M.; BLOUIN, S.: *Optimization-based assessment of design limitations to air separation plant agility in demand response scenarios*. Journal of Process Control 33 (2015), S. 37–48. ISSN: 09591524. DOI: 10.1016/j.jprocont.2015.05.002.

CAO ET AL. 2017

CAO, Y.; SWARTZ, C. L.; FLORES-CERRILLO, J.: *Preemptive dynamic operation of cryogenic air separation units*. AIChE Journal 63.9 (2017), S. 3845–3859. ISSN: 0001-1541. DOI: 10.1002/aic.15753.

CASPARI ET AL. 2019a

CASPARI, A.; MARTIN PÉREZ, Y.; OFFERMANN, C.; SCHÄFER, P.; ECKER, A.-M.; PESCHEL, A.; SCHLIEBITZ, F.; ZAPP, G.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *Economic Nonlinear Model Predictive Control of Multi-Product Air Separation Processes*. 29th European Symposium on Computer Aided Chemical Engineering. Hrsg. von A. A. Kiss; E. Zondervan; R. Lakerveld; L. ÖZKAN. 46. Computer Aided Chemical Engineering. Amsterdam, Boston und Heidelberg: Elsevier, 2019, S. 1–6. ISBN: 9780128186343. DOI: 10.1016/B978-0-12-818634-3.50001-1.

CASPARI 2021

CASPARI, A.: *Optimal flexible operation of dynamic processes: Dissertation*. 2021. URL: <https://publications.rwth-aachen.de/record/811656>.

CASPARI ET AL. 2020a

CASPARI, A.; FAHR, S. R.; OFFERMANN, C.; MHAMDI, A.; BIEGLER, L. T.; MITSOS, A.: *Optimal Start-Up of Air Separation Processes using Dynamic Optimization with Complementarity Constraints*. 30th European Symposium on Computer Aided Chemical Engineering. 48. Computer Aided Chemical Engineering. Elsevier, 2020, S. 1147–1152. ISBN: 9780128233771. DOI: 10.1016/B978-0-12-823377-1.50192-0.

CASPARI ET AL. 2018

CASPARI, A.; FAUST, J. M.; SCHÄFER, P.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *Economic Nonlinear Model Predictive Control for Flexible Operation of Air Separation Units*. IFAC-PapersOnLine 51.20 (2018), S. 295–300. ISSN: 24058963. DOI: 10.1016/j.ifacol.2018.11.028.

CASPARI ET AL. 2020b

CASPARI, A.; LÜKEN, L.; SCHÄFER, P.; VAUPEL, Y.; MHAMDI, A.; BIEGLER, L. T.; MITSOS, A.: *Dynamic optimization with complementarity constraints: Smoothing for direct shooting*. Computers & Chemical Engineering 139 (2020), S. 106891. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2020.106891.

CASPARI ET AL. 2020c

CASPARI, A.; OFFERMANN, C.; ECKER, A.-M.; POTTMANN, M.; ZAPP, G.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *A wave propagation approach for reduced dynamic modeling of distillation columns: Optimization and control*. Journal of Process Control 91 (2020), S. 12–24. ISSN: 09591524. DOI: 10.1016/j.jprocont.2020.05.004.

CASPARI ET AL. 2019b

CASPARI, A.; OFFERMANN, C.; SCHÄFER, P.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *A flexible air separation process: 2. Optimal operation using economic model predictive control*. AIChE Journal 65.11 (2019). ISSN: 00011541. DOI: 10.1002/aic.16721.

CASPARI ET AL. 2020d

CASPARI, A.; TSAY, C.; MHAMDI, A.; BALDEA, M.; MITSOS, A.: *The integration of scheduling and control: Top-down vs. bottom-up*. Journal of Process Control 91 (2020), S. 50–62. ISSN: 09591524. DOI: 10.1016/j.jprocont.2020.05.008.

CHARLES C. HERRON ET AL. 1988

CHARLES C. HERRON; BRADLEY K. KRUELSKIE; JAMES R. FAIR: *Hydrodynamics and mass transfer on three-phase distillation trays*. AIChE Journal 34.8 (1988), S. 1267–1274. DOI: 10.1002/aic.690340805.

CHEN ET AL. 2007

CHEN, Z.; HENSON, M.; BELANGER, P.; MEGAN, L.: *Nonlinear model predictive control of cryogenic air separation columns*. Proceedings of AIChE Annual Meeting. 2007. URL: <https://aiche.confex.com/aiche/2007/techprogram/p100599.htm>.

CHEN ET AL. 2010

CHEN, Z.; HENSON, M. A.; BELANGER, P.; MEGAN, L.: *Nonlinear model predictive control of high purity distillation columns for cryogenic air separation*. IEEE Transactions on Control Systems Technology 18.4 (2010), S. 811–821.

COLWELL 1981

COLWELL, C. J.: *Clear liquid height and froth density on sieve trays*. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development 20.2 (1981), S. 298–307. ISSN: 0196-4305. DOI: 10.1021/i200013a019.

D. L. BENNETT ET AL. 1983

D. L. BENNETT; RAKESH AGRAWAL; P. J. COOK: *New pressure drop correlation for sieve tray distillation columns*. AIChE Journal 29.3 (1983), S. 434–442. DOI: 10.1002/aic.690290313.

DARYANIAN ET AL. 1989

DARYANIAN, B.; BOHN, R. E.; TABORS, R. D.: *Optimal demand-side response to electricity spot prices for storage-type customers*. IEEE Transactions on Power Systems 4.3 (1989), S. 897–903. ISSN: 08858950. DOI: 10.1109/59.32577.

DEUFLHARD & HOHMANN 2008

DEUFLHARD, P.; HOHMANN, A.: *Numerische mathematik 1: Eine algorithmisch orientierte einföhrung*. 4., überarbeitete und erweiterte Auflage. de Gruyter Lehrbuch. Berlin, Germany: Walter de Gruyter, 2008. ISBN: 9783110203554. URL: <https://ebookcentral.proquest.com/lib/kxp/detail.action?docID=1037981>.

DIN DEUTSCHES INSTITUT FÜR NORMUNG E.V. 2010

DIN DEUTSCHES INSTITUT FÜR NORMUNG E.V.: *DIN EN 62424 Darstellung von Aufgaben der Prozessleittechnik - Fließbilder und Datenaustausch zwischen EDV-Werkzeugen zur Fließbilderstellung und CAE-Systemen*. (2010).

DIN DEUTSCHES INSTITUT FÜR NORMUNG E.V. 2015

DIN DEUTSCHES INSTITUT FÜR NORMUNG E.V.: *DIN EN 60534-1 Stellventile für die Prozessregelung: Teil 1: Begriffe und allgemeine Betrachtungen*. (2015).

DOHRN 1994

DOHRN, R.: *Berechnung von Phasengleichgewichten*. Springer eBook Collection Computer Science and Engineering. Wiesbaden und s.l.: Vieweg+Teubner Verlag, 1994. ISBN: 9783322992123. DOI: 10.1007/978-3-322-99211-6.

DONAHUE ET AL. 2016

DONAHUE, M. M.; ROACH, B. J.; DOWNS, J. J.; BLEVINS, T.; BALDEA, M.; ELDRIDGE, R. B.: *Dividing wall column control: Common practices and key findings*. Chemical Engineering and Processing - Process Intensification 107 (2016), S. 106–115. ISSN: 02552701. DOI: 10.1016/j.cep.2016.05.013.

DU ET AL. 2015

DU, J.; PARK, J.; HARJUNKOSKI, I.; BALDEA, M.: *A time scale-bridging approach for integrating production scheduling and process control*. Computers & Chemical Engineering 79 (2015), S. 59–69. ISSN: 00981354.

DYOs 21.02.2022

DYOs: *DyOs*. 21.02.2022. URL: <https://www.avt.rwth-aachen.de/cms/AVT/Wirtschaft/SoftwareSimulation/~iptr/Dy%20Os/lidx/1/>.

ECKER 08.04.2022

ECKER, A.-M.: *Diskussion über die Automatisierungspyramide am Beispiel der flexiblen Luftzerlegungsanlage: Persönliches Gespräch (Linde Engineering)*. Pullach bei München, 8.04.2022.

EDMISTER 1943

EDMISTER, W. C.: *Design for Hydrocarbon Absorption and Stripping*. Industrial & Engineering Chemistry 35.8 (1943), S. 837–839. ISSN: 0019-7866. DOI: 10.1021/ie50404a003.

EICH-SOELLNER ET AL. 1997

EICH-SOELLNER, E.; LORY, P.; BURR PETER: *Stationary and dynamic flowsheeting in the chemical engineering industry*. 1997. URL: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/summary?doi=10.1.1.570.693>.

ENGELL 2007

ENGELL, S.: *Feedback control for optimal process operation*. Journal of Process Control 17.3 (2007), S. 203–219. ISSN: 09591524. DOI: 10.1016/j.jprocont.2006.10.011.

ENGL ET AL. 1999

ENGL, G.; KRÖNER, A.; KRONSEDER, T.; VON STRYK, O.: *Numerical Simulation and Optimal Control of Air Separation Plants*. High Performance Scientific and Engineering Computing. Hrsg. von H.-J. BUNGARTZ; F. DURST; C. ZENGER. Lecture Notes in Computational Science and Engineering. Berlin und Heidelberg: Springer, 1999, S. 221–231. ISBN: 978-3-642-60155-2.

FALTA ET AL. 2016

FALTA, S. R.; POWELL, B. S.; HOWARD, H. E.; CHAKRAVARTHY, VIJAYARAGHAVAN, S.; SHELAT, MAULIK, R.: „Argon condensation system and method“. WO2016004144A1. 2016.

GAMMA ET AL. 2011

GAMMA, E.; HELM, R.; JOHNSON, R.; VLISSIDES, J. M.: *Design Patterns: Elements of Reusable Object-Oriented Software*. [6. Aufl.] Klassiker. München: Addison-Wesley, 2011. ISBN: 9783827330437.

GARETTI ET AL. 2012

GARETTI, M.; ROSA, P.; TERZI, S.: *Life Cycle Simulation for the Design of Product–Service Systems*. Computers in Industry 63.4 (2012), S. 361–369. ISSN: 01663615. DOI: 10.1016/j.compind.2012.02.007.

GILLES & RETZBACH 1980

GILLES, E. D.; RETZBACH, B.: *Reduced models and control of distillation columns with sharp temperature profiles*. Decision and Control including the Symposium on Adaptive Processes, 1980 19th IEEE Conference on. 1980, S. 865–870.

GRAZIANI & XIBILIA 2020

GRAZIANI, S.; XIBILIA, M. G.: *Deep Learning for Soft Sensor Design. Development and Analysis of Deep Learning Architectures*. Springer, Cham, 2020, S. 31–59. DOI: 10.1007/978-3-030-31764-5_2. URL: https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-030-31764-5_2.

HAIDER ET AL. 2021

HAIDER, P.; FREKO, P.; ACHER, T.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Influence of inlet configuration and distributor geometry on the performance of cryogenic plate-fin heat exchangers*. Applied Thermal Engineering 195 (2021), S. 117197. ISSN: 13594311. DOI: 10.1016/j.applthermaleng.2021.117197.

HANKE-BOURGEOIS 2009

HANKE-BOURGEOIS, M.: *Grundlagen der Numerischen Mathematik und des Wissenschaftlichen Rechnens*. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2009. ISBN: 9783834807083. DOI: 10.1007/978-3-8348-9309-3.

HÄRING 2008

HÄRING, H.-W., Hrsg.: *Industrial gases processing*. Weinheim: WILEY-VCH, 2008. ISBN: 352731685X. URL: <http://swbplus.bsz-bw.de/bsz266329071cov.htm>.

HARJUNKOSKI ET AL. 2014

HARJUNKOSKI, I.; MARAVELIAS, C. T.; BONGERS, P.; CASTRO, P. M.; ENGELL, S.; GROSSMANN, I. E.; HOOKER, J.; MÉNDEZ, C.; SAND, G.; WASSICK, J.: *Scope for industrial applications of production scheduling models and solution methods*. Computers & Chemical Engineering 62 (2014), S. 161–193. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2013.12.001.

HASELER 1983

HASELER, L. E.: *Performance Calculation Methods for Multi-stream Plate-Fin Heat Exchangers*. Heat exchangers. Hrsg. von J. TABOREK; G. F. HEWITT. Proceedings of the International Centre for Heat and Mass Transfer. Washington: Hemisphere Publ. Corp, 1983, S. 495–506. ISBN: 978-0-07062-806-9. DOI: 10.1615/ICHMT.1981. AdvCourseHeatExch.320.

HAUSEN & LINDE 1985

HAUSEN, H.; LINDE, H.: *Tieftemperaturtechnik: Erzeugung sehr tiefer Temperaturen, Gasverflüssigung und Zerlegung von Gasgemischen*. 4th Edition. Berlin: Springer, 1985. ISBN: 9783662105542.

HEHENBERGER & BRADLEY 2016

HEHENBERGER, P.; BRADLEY, D., Hrsg.: *Mechatronic Futures: Challenges and Solutions for Mechatronic Systems and their Designers*. Cham und s.l.: Springer International Publishing, 2016. ISBN: 978-3-319-32154-7. DOI: 10.1007/978-3-319-32156-1.

HESSELGREAVES ET AL. 2017

HESSELGREAVES, J. E.; LAW, R.; REAY, D. A.: *Compact heat exchangers: Selection, design, and operation*. Second edition. Amsterdam, Netherlands: Butterworth-Heinemann, 2017. ISBN: 9780081003060.

HOGAN 2014

HOGAN, R. J.: *Fast Reverse-Mode Automatic Differentiation using Expression Templates in C++*. ACM Transactions on Mathematical Software 40.4 (2014), S. 1–16. ISSN: 0098-3500. DOI: 10.1145/2560359.

HONEYWELL 25.08.2022

HONEYWELL: *Practical Applications of a Dynamic Digital Twin*. 25.08.2022. URL: https://pmt.honeywell.com/learn/c/honeywell_practical--1?x=FwdDzz.

HUANG & BIEGLER 2012

HUANG, R.; BIEGLER, L. T.: *Economic NMPC for energy intensive applications with electricity price prediction. 11th international symposium on process systems engineering - PSE2012*. 31. Computer Aided Chemical Engineering. Oxford: Elsevier, 2012, S. 1612–1616. ISBN: 9780444595058. DOI: 10.1016/B978-0-444-59506-5.50153-X.

HUANG ET AL. 2009

HUANG, R.; ZAVALA, V. M.; BIEGLER, L. T.: *Advanced step nonlinear model predictive control for air separation units*. Journal of Process Control 19.4 (2009), S. 678–685. ISSN: 09591524. DOI: 10.1016/j.jprocont.2008.07.006.

IERAPETRITOU ET AL. 2002

IERAPETRITOU, M. G.; WU, D.; VIN, J.; SWEENEY, P.; CHIGIRINSKIY, M.: *Cost Minimization in an Energy-Intensive Plant Using Mathematical Programming Approaches*. Industrial & Engineering Chemistry Research 41.21 (2002), S. 5262–5277. ISSN: 0888-5885. DOI: 10.1021/ie011012b.

JIANG ET AL. 2021

JIANG, Y.; YIN, S.; DONG, J.; KAYNAK, O.: *A Review on Soft Sensors for Monitoring, Control, and Optimization of Industrial Processes*. IEEE Sensors Journal 21.11 (2021), S. 12868–12881. ISSN: 1530-437X. DOI: 10.1109/JSEN.2020.3033153.

KADLEC ET AL. 2009

KADLEC, P.; GABRYS, B.; STRANDT, S.: *Data-driven Soft Sensors in the process industry*. Computers & Chemical Engineering 33.4 (2009), S. 795–814. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2008.12.012.

KARWAN & KEBLIS 2007

KARWAN, M. H.; KEBLIS, M. F.: *Operations planning with real time pricing of a primary input*. Computers & Operations Research 34.3 (2007), S. 848–867. ISSN: 03050548. DOI: 10.1016/j.cor.2005.05.014.

KAYS & LONDON 1997

KAYS, W. M.; LONDON, A. L.: *Compact heat exchangers*. Malabar, Florida: Krieger Publishing, 1997.

KELLEY ET AL. 2020

KELLEY, M. T.; BALDICK, R.; BALDEA, M.: *Demand response scheduling under uncertainty: Chance-constrained framework and application to an air separation unit*. AIChE Journal 66.9 (2020). ISSN: 00011541. DOI: 10.1002/aic.16273.

KELLEY ET AL. 2018

KELLEY, M. T.; PATTISON, R. C.; BALDICK, R.; BALDEA, M.: *An MILP framework for optimizing demand response operation of air separation units*. Applied energy 222 (2018), S. 951–966.

KELLEY ET AL. 2022

KELLEY, M. T.; TSAY, C.; CAO, Y.; WANG, Y.; FLORES-CERRILLO, J.; BALDEA, M.: *A data-driven linear formulation of the optimal demand response scheduling problem for an industrial air separation unit*. Chemical Engineering Science 252 (2022), S. 117468. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/j.ces.2022.117468.

KENDER ET AL. 2021a

KENDER, R.; KAUFMANN, F.; RÖSSLER, F.; WUNDERLICH, B.; GOLUBEV, D.; THOMAS, I.; ECKER, A.-M.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Development of a digital twin for a flexible air separation unit using a pressure-driven simulation approach*. Computers & Chemical Engineering 151 (2021), S. 107349. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2021.107349.

KENDER ET AL. 2022a

KENDER, R.; RÖSSLER, F.; WUNDERLICH, B.; POTTMANN, M.; GOLUBEV, D.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Development of control strategies for an air separation unit with a divided wall column using a pressure-driven digital twin*. Chemical Engineering and Processing - Process Intensification 176 (2022), S. 108893. ISSN: 02552701. DOI: 10.1016/j.cep.2022.108893.

KENDER ET AL. 2022b

KENDER, R.; RÖSSLER, F.; WUNDERLICH, B.; POTTMANN, M.; THOMAS, I.; ECKER, A.-M.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Improving the load flexibility of industrial air separation units using a pressure-driven digital twin*. AIChE Journal 68.7 (2022), e17692. DOI: 10.1002/aic.17692.

KENDER ET AL. 04.11.2019

KENDER, R.; RÖSSLER, F.; WUNDERLICH, B.; THOMAS, I.; FREKO, P.; PESCHEL, A.; ECKER, A.-M.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Vorteile eines druckgetriebenen Modellierungsansatzes bei der dynamischen Simulation eines Wärmeübertragers: Teil I - Druckgetriebener Modellierungsansatz*. Dortmund, 4.11.2019.

KENDER ET AL. 2023

KENDER, R.; STOPS, L.; KRESPACH, V.; WUNDERLICH, B.; POTTMANN, M.; ECKER, A.-M.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Reduced order modeling of a pressure column of an air separation unit using the Dynamic Edmister Method*. Computers & Chemical Engineering (2023), S. 108250. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2023.108250.

KENDER ET AL. 2021b

KENDER, R.; WUNDERLICH, B.; RÖSSLER, F.; SCHLIEBITZ, F.; GOLUBEV, D.; POTTMANN, M.; THOMAS, I.; ECKER, A.-M.; LOCHNER, S.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Towards Flexible Operation of Air Separation Units - How can Digital Twins Contribute?* München, 2021.

KENDER ET AL. 2018

KENDER, R.; WUNDERLICH, B.; THOMAS, I.; PESCHEL, A.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Pressure-Driven Dynamic Simulation of Distillation Columns in Air Separation Units*. Chemical Engineering Transactions 69 (2018), S. 271–276. DOI: 10.3303/CET1869046.

KENDER ET AL. 2019

KENDER, R.; WUNDERLICH, B.; THOMAS, I.; PESCHEL, A.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Pressure-driven dynamic simulation of start up and shutdown procedures of distillation columns in air separation units*. Chemical Engineering Research and Design 147 (2019), S. 98–112. ISSN: 02638762. DOI: 10.1016/j.cherd.2019.04.031.

KHOWINIJ ET AL. 2005

KHOWINIJ, S.; HENSON, M. A.; BELANGER, P.; MEGAN, L.: *Dynamic compartmental modeling of nitrogen purification columns*. Separation and Purification Technology 46.1-2 (2005), S. 95–109.

KIENLE ET AL. 1995

KIENLE, A.; GROEBEL, M.; GILLES, E. D.: *Multiple steady states in binary distillation—Theoretical and experimental results*. Chemical Engineering Science 50.17 (1995), S. 2691–2703. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/0009-2509(95)00113-J.

KIENLE 2000

KIENLE, A.: *Low-order dynamic models for ideal multicomponent distillation processes using nonlinear wave propagation theory*. Chemical Engineering Science 55.10 (2000), S. 1817–1828. ISSN: 00092509.

KLEIN ET AL. 2020

KLEIN, H.; FRITSCH, P.; HAIDER, P.; KENDER, R.; RÖSSLER, F.; REHFELDT, S.; FREKO, P.; HOFFMANN, R.; THOMAS, I.; WUNDERLICH, B.: *Flexibler Betrieb von Luftzerlegungsanlagen*. Chemie Ingenieur Technik 92.12 (2020), S. 1921–1940. DOI: 10.1002/cite.202000054.

KRESPACH ET AL. 2022

KRESPACH, V.; BLUM, N.; POTTMANN, M.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *Hybrid Modeling Approaches for Air Separation Unit Control Applications*. 12th International Conference on Distillation & Absorption. 2022.

KRITZINGER ET AL. 2018

KRITZINGER, W.; KARNER, M.; TRAAR, G.; HENJES, J.; SIHN, W.: *Digital Twin in Manufacturing: A Categorical Literature Review and Classification*. IFAC-PapersOnLine 51.11 (2018), S. 1016–1022. ISSN: 24058963. DOI: 10.1016/j.ifacol.2018.08.474.

KRÖNER ET AL. 2001

KRÖNER, A.; KRONSEDER, T.; ENGL, G.; STRYK, O. V.: *Dynamic optimization for air separation plants. European Symposium on Computer Aided Process Engineering*. Hrsg. von R. GANI; S. B. JØRGENSEN. 9. Computer-aided chemical engineering. s.l.: Elsevier textbooks, 2001, S. 433–438. ISBN: 9780444507099. DOI: 10.1016/S1570-7946(01)80067-5.

KRONSEDER 2003

KRONSEDER, T.: *Towards nonlinear model-based online optimal control of chemical engineering plants: parameterised controls and sensitivity functions for very large-scale index-2 DAE systems with State Dependent Discontinuities: Zugl.: Darmstadt, Techn. Univ., Diss., 2002*. Als Ms. gedr. 977. Fortschritt-Berichte VDI Reihe 8, Meß-, Steuerungs- und Regelungstechnik. Düsseldorf: VDI-Verl., 2003. ISBN: 3183977087.

LIN ET AL. 2006

LIN, B.; RECKE, B.; KNUDSEN, J. K.; JØRGENSEN, S. B.: *A systematic approach for soft sensor development*. Computers & Chemical Engineering 31.5-6 (2006), S. 419–425. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2006.05.030.

LINDE GMBH, MERCHANT AND PACKAGED GASES 2020

LINDE GMBH, MERCHANT AND PACKAGED GASES: *Gases & Applications*. 2020. URL: https://www.linde-gas.com/en/images/0000378_C_HiQ_Gas_and_applications_handbook_branding_update_V2_tcm17-168809.pdf.

LING & LUYBEN 2010

LING, H.; LUYBEN, W. L.: *Temperature Control of the BTX Divided-Wall Column*. Industrial & Engineering Chemistry Research 49.1 (2010), S. 189–203. ISSN: 0888-5885. DOI: 10.1021/ie900125w.

LOCHNER 29.04.2021

LOCHNER, S.: *Diskussion über den Energieverbrauch von Luftzerlegungsanlagen in Deutschland: Persönliches Gespräch (Linde Engineering)*. Pullach bei München, 29.04.2021.

MARTINEZ ET AL. 2018

MARTINEZ, G. S.; SIERLA, S.; KARHELA, T.; VYATKIN, V.: *Automatic Generation of a Simulation-Based Digital Twin of an Industrial Process Plant*. (2018). DOI: 10.1109/IECON.2018.8591464.

MILLER ET AL. 2008

MILLER, J.; LUYBEN, W. L.; BELANGER, P.; BLOUIN, S.; MEGAN, L.: *Improving Agility of Cryogenic Air Separation Plants*. Industrial & Engineering Chemistry Research 47.2 (2008), S. 394–404. ISSN: 0888-5885. DOI: 10.1021/ie070975t.

MIN ET AL. 2019

MIN, Q.; LU, Y.; LIU, Z.; SU, C.; WANG, B.: *Machine Learning Based Digital Twin Framework for Production Optimization in Petrochemical Industry: International Journal of Information Management*, 49, 502-519. (2019). DOI: 10.1016/J.IJINFOMGT.2019.05.020.

MITRA ET AL. 2012

MITRA, S.; GROSSMANN, I. E.; PINTO, J. M.; ARORA, N.: *Optimal production planning under time-sensitive electricity prices for continuous power-intensive processes*. Computers & Chemical Engineering 38 (2012), S. 171–184. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2011.09.019.

MITRA ET AL. 2014

MITRA, S.; PINTO, J. M.; GROSSMANN, I. E.: *Optimal multi-scale capacity planning for power-intensive continuous processes under time-sensitive electricity prices and demand uncertainty. Part I: Modeling*. Computers & Chemical Engineering 65 (2014), S. 89–101. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2014.01.016.

MOLL 2014

MOLL, A.: *Air Distillation. Distillation: operation and applications*. Hrsg. von A. GÓRAK. Amsterdam: Elsevier/Acad. Press, 2014, S. 255–295. ISBN: 9780123868763. DOI: 10.1016/B978-0-12-386876-3.00006-5.

MORARI ET AL. 1980

MORARI, M.; ARKUN, Y.; STEPHANOPOULOS, G.: *Studies in the synthesis of control structures for chemical processes: Part I: Formulation of the problem. Process decomposition and the classification of the control tasks. Analysis of the optimizing control structures*. AIChE Journal 26.2 (1980), S. 220–232. ISSN: 00011541. DOI: 10.1002/aic.690260205.

MURPHREE 1925

MURPHREE, E. V.: *Rectifying Column Calculations: Industrial & Engineering Chemistry*, 17(7), 747-750. (1925). DOI: 10.1021/IE50187A044.

NAUMANN & SCHENK 2012

NAUMANN, U.; SCHENK, O.: *Combinatorial scientific computing*. 12. Chapman & Hall/CRC Computational Science Series. Boca Raton, Fla.: CRC Press, 2012. ISBN: 9781439827352.

NEGRI ET AL. 2017

NEGRI, E.; FUMAGALLI, L.; MACCHI, M.: *A Review of the Roles of Digital Twin in CPS-based Production Systems*. Procedia Manufacturing 11 (2017), S. 939–948. ISSN: 23519789. DOI: 10.1016/j.promfg.2017.07.198.

NIROOMAND ET AL. 2019

NIROOMAND, R.; SAIDI, M. H.; HANNANI, S. K.: *A quasi-three-dimensional thermal model for multi-stream plate fin heat exchangers*. Applied Thermal Engineering 157 (2019), S. 113730. ISSN: 13594311. DOI: 10.1016/j.applthermaleng.2019.113730.

OBERMEIER 2021

OBERMEIER, A.: *Derivation of design decisions for dynamically operated air separation units using methods of Operations Research: Dissertation*. 2021.

OBERMEIER ET AL. 2021

OBERMEIER, A.; VOLLMER, N.; WINDMEIER, C.; ESCHE, E.; REPKE, J.-U.: *Generation of linear-based surrogate models from non-linear functional relationships for use in scheduling formulation*. Computers & Chemical Engineering 146 (2021), S. 107203. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2020.107203.

OBERMEIER ET AL. 2019

OBERMEIER, A.; WINDMEIER, C.; ESCHE, E.; REPKE, J.-U.: *A discrete-time scheduling model for power-intensive processes taking fatigue of equipment into consideration*. Chemical Engineering Science 195 (2019), S. 904–920. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/j.ces.2018.10.036.

PANTELIDES & RENFRO 2013

PANTELIDES, C. C.; RENFRO, J. G.: *The Online Use of First-Principles Models in Process Operations: Review, Current Status and Future Needs*. Computers & Chemical Engineering 51 (2013), S. 136–148. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2012.07.008.

PATTISON & BALDEA 2014

PATTISON, R. C.; BALDEA, M.: *Optimal Design of Air Separation Plants with Variable Electricity Pricing. Proceedings of the 8th International Conference on Foundations of Computer-Aided Process Design*. Hrsg. von M. R. EDEN. 34. Computer-aided chemical engineering. Amsterdam: Elsevier, 2014, S. 393–398. ISBN: 9780444634337. DOI: 10.1016/B978-0-444-63433-7.50050-X.

PATTISON ET AL. 2017

PATTISON, R. C.; TOURETZKY, C. R.; HARJUNKOSKI, I.; BALDEA, M.: *Moving horizon closed-loop production scheduling using dynamic process models*. AIChE Journal 63.2 (2017), S. 639–651.

PATTISON ET AL. 2016

PATTISON, R. C.; TOURETZKY, C. R.; JOHANSSON, T.; HARJUNKOSKI, I.; BALDEA, M.: *Optimal process operations in fast-changing electricity markets: framework for scheduling with low-order dynamic models and an air separation application*. Industrial & Engineering Chemistry Research 55.16 (2016), S. 4562–4584.

RAFTERY ET AL. 2017

RAFTERY, A. E.; ZIMMER, A.; FRIERSON, D. M. W.; STARTZ, R.; LIU, P.: *Less Than 2 °C Warming by 2100 Unlikely*. Nature climate change 7 (2017), S. 637–641. ISSN: 1758-678X. DOI: 10.1038/nclimate3352.

ROFFEL ET AL. 2000

ROFFEL, B.; BETLEM, B.; DE RUIJTER, J.: *First principles dynamic modeling and multivariable control of a cryogenic distillation process*. Computers & Chemical Engineering 24.1 (2000), S. 111–123. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/S0098-1354(00)00313-6.

ROMIJN ET AL. 2008

ROMIJN, R.; ÖZKAN, L.; WEILAND, S.; LUDLAGE, J.; MARQUARDT, W.: *A grey-box modeling approach for the reduction of nonlinear systems*. Journal of Process Control 18.9 (2008), S. 906–914. ISSN: 09591524.

ROSEN ET AL. 2015

ROSEN, R.; VON WICHERT, G.; LO, G.; BETTENHAUSEN, K. D.: *About the Importance of Autonomy and Digital Twins for the Future of Manufacturing*. IFAC-PapersOnLine 48.3 (2015), S. 567–572. ISSN: 24058963. DOI: 10.1016/j.ifacol.2015.06.141.

RÖSSLER ET AL. 2022

RÖSSLER, F.; FREKO, P.; THOMAS, I.; KENDER, R.; REHFELDT, S.; KLEIN, H.: *A modular-hierarchical framework for the pressure-driven simulation of heat exchanger dynamics*. Computers & Chemical Engineering 163 (2022), S. 107821. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2022.107821.

RUDD & WATSON 1968

RUDD, D. F.; WATSON, C. C.: *Strategy of Process Engineering*. 1968.

SACCO ET AL. 2010

SACCO, M.; PEDRAZZOLI, P.; TERKAJ WALTER: *VFF: Virtual Factory Framework*. 2010 IEEE International Technology Management Conference (ICE). Piscataway, NJ: IEEE, 2010, S. 1–8. ISBN: 978-1-62748-686-6.

SASS & MITSOS 2019

SASS, S.; MITSOS, A.: *Optimal operation of dynamic (energy) systems: When are quasi-steady models adequate?*: Computers & Chemical Engineering 124 (2019), S. 133–139. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2019.02.011.

SAUER ET AL. 2019

SAUER, A.; ABELE, E.; BUHL, H. U., Hrsg.: *Energieflexibilität in der deutschen Industrie: Ergebnisse aus dem Kopernikus-Projekt - Synchronisierte und energieadaptive Produktionstechnik zur flexiblen Ausrichtung von Industrieprozessen auf eine fluktuierende Energieversorgung (SynErgie)*. Stuttgart: Fraunhofer Verlag, 2019. ISBN: 9783839614792. URL: <https://opus.hs-offenburg.de/frontdoor/index/index/docId/4061>.

SCHÄFER 2020

SCHÄFER, P.: *Model-based approaches to demand side management of continuous industrial processes: Dissertation*. 2020. URL: <http://publications.rwth-aachen.de/record/810112/files/810112.pdf>.

SCHÄFER ET AL. 2018

SCHÄFER, P.; BERING, L. F.; CASPARI, A.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *Nonlinear Dynamic Optimization for Improved Load-Shifting Agility of Cryogenic Air Separation Plants. 13th International Symposium on Process Systems Engineering (PSE 2018)*. Hrsg. von M. R. EDEN; M. G. IERAPETRITOU; G. P. TOWLER. 44. Computer-aided chemical engineering. Amsterdam, Boston und Heidelberg: Elsevier, 2018, S. 547–552. ISBN: 9780444642417. DOI: 10.1016/B978-0-444-64241-7.50086-0.

SCHÄFER ET AL. 2019a

SCHÄFER, P.; CASPARI, A.; KLEINHANS, K.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *Reduced dynamic modeling approach for rectification columns based on compartmentalization and artificial neural networks*. *AIChE Journal* 65.5 (2019), e16568. ISSN: 00011541. DOI: 10.1002/aic.16568.

SCHÄFER ET AL. 2019b

SCHÄFER, P.; CASPARI, A.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *Economic nonlinear model predictive control using hybrid mechanistic data-driven models for optimal operation in real-time electricity markets: In-silico application to air separation processes*. *Journal of Process Control* 84 (2019), S. 171–181. ISSN: 09591524. DOI: 10.1016/j.jprocont.2019.10.008.

SCHLEICH ET AL. 2017

SCHLEICH, B.; ANWER, N.; MATHIEU, L.; WARTZACK, S.: *Shaping the Digital Twin for Design and Production Engineering*. *CIRP Annals* 66.1 (2017), S. 141–144. ISSN: 00078506. DOI: 10.1016/j.cirp.2017.04.040.

SCHULZE ET AL. 2021

SCHULZE, J. C.; CASPARI, A.; OFFERMANN, C.; MHAMDI, A.; MITSOS, A.: *Nonlinear model predictive control of ultra-high-purity air separation units using transient wave propagation model*. *Computers & Chemical Engineering* 145 (2021), S. 107163. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2020.107163.

SEBORG ET AL. 2017

SEBORG, D. E.; EDGAR, T. F.; MELLICHAMP, D. A.; DOYLE, F. J.: *Process dynamics and control*. Fourth edition, EMEA edition. Hoboken, NJ: Wiley, 2017. ISBN: 9781119587491.

SHAFTO ET AL. 2010

SHAFTO, M.; CONORY, M.; DOLYE, R.; GLAESSGEN, E.; KEMP, C.; LEMOIGNE JACQUELINE; WANG, L.: *DRAFT Modeling, Simulation, Information Technology & Processing Technology Area 11, 2010*. (2010).

SHAFTO ET AL. 2012

SHAFTO, M.; CONORY, M.; DOLYE, R.; GLAESSGEN, E.; KEMP, C.; LEMOIGNE JACQUELINE; WANG, L.: *Modeling, Simulation, Information, Technology & Processing Roadmap Technology Area 11, 2012*. (2012).

SIEMENS 25.08.2022

SIEMENS: *PlantSight: Ein kompletter digitaler Zwilling für die Prozessindustrie*. 25.08.2022. URL: <https://new.siemens.com/de/de/produkte/automatisierung/industrie-software/plantsight.html>.

SKOGESTAD 1997

SKOGESTAD, S.: *Dynamics and control of distillation columns-a critical survey*. Modeling, Identification and Control 18 (1997), S. 177–217.

SKOGESTAD 2001

SKOGESTAD, S.: *Probably the best simple PID tuning rules in the world*. Proceedings of AIChE Annual Meeting, Paper 276h, Reno, NV (2001).

SOAVE 1972

SOAVE, G.: *Equilibrium constants from a modified Redlich-Kwong equation of state*. Chemical Engineering Science 27.6 (1972), S. 1197–1203. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/0009-2509(72)80096-4.

STEPHAN ET AL. 2013

STEPHAN, P.; SCHABER, K.; STEPHAN, K.; MAYINGER, F.: *Thermodynamik: Grundlagen und technische Anwendungen Band 1: Einstoffsysteme*. 19. Aufl. 2013. Springer-Lehrbuch. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2013. ISBN: 9783642300981. URL: <http://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:bsz:31-epflicht-1506660>.

STICHLMAIR ET AL. 2021

STICHLMAIR, J.; KLEIN, H.; REHFELDT, S.: *Distillation: Principles and practice*. Second edition. Hoboken, New Jersey: Wiley, 2021. ISBN: 9781119414698. URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/9781119414674>.

TERKAJ & URGO 2014

TERKAJ, W.; URGO, M.: *Ontology-Based Modeling of Production Systems for Design and Performance Evaluation*. 2014 12th IEEE International Conference on Industrial Informatics (INDIN 2014). Hrsg. von C. E. PEREIRA. Piscataway, NJ: IEEE, 2014, S. 748–753. ISBN: 978-1-4799-4905-2. DOI: 10.1109/INDIN.2014.6945606.

THOMAS 21.11.2017

THOMAS, I.: *SMI@LE - Simulation Model Infrastructure @ LE*. Würzburg, 21.11.2017.

THOMAS ET AL. 2020

THOMAS, I.; WUNDERLICH, B.; GROHMANN, S.: *Pressure-driven dynamic process simulation using a new generic stream object*. Chemical Engineering Science 215 (2020), S. 115171. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/j.ces.2019.115171.

TSAY ET AL. 2018a

TSAY, C.; BALDEA, M.; SHI, J.; KUMAR, A.; FLORES-CERRILLO, J.: *Data-Driven Models and Algorithms for Demand Response Scheduling of Air Separation Units. 13th International Symposium on Process Systems Engineering (PSE 2018)*. Hrsg. von M. R. EDEN; M. G. IERAPETRITOU; G. P. TOWLER. 44. Computer-aided chemical engineering. Amsterdam, Boston und Heidelberg: Elsevier, 2018, S. 1273–1278. ISBN: 9780444642417. DOI: 10.1016/B978-0-444-64241-7.50207-X.

TSAY ET AL. 2019

TSAY, C.; KUMAR, A.; FLORES-CERRILLO, J.; BALDEA, M.: *Optimal demand response scheduling of an industrial air separation unit using data-driven dynamic models*. *Computers & Chemical Engineering* 126 (2019), S. 22–34. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2019.03.022.

TSAY ET AL. 2018b

TSAY, C.; PATTISON, R. C.; PIANA, M. R.; BALDEA, M.: *A Survey of Optimal Process Design Capabilities and Practices in the Chemical and Petrochemical Industries: Computers & Chemical Engineering, 112, 180-189*. (2018). DOI: 10.1016/J.COMPCHEMENG.2018.01.012.

UNFCCC 2015

UNFCCC: *Paris Agreement to the United Nations Framework Convention on Climate Change 12.12.2015*. 2015.

VDI 2022

VDI: *Simulation und digitaler Zwilling im Anlagenlebenszyklus*. (2022).

VON LINDE 1908

VON LINDE, C.: „Verfahren und Vorrichtung zur Herstellung von reinem Sauerstoff und reinem Stickstoff durch Rektifikation atmosphärischer Luft“. DE 203814. 1908.

WAYBURN & SEADER 1987

WAYBURN, T. L.; SEADER, J. D.: *Homotopy continuation methods for computer-aided process design*. *Computers & Chemical Engineering* 11.1 (1987), S. 7–25. ISSN: 00981354. DOI: 10.1016/0098-1354(87)80002-9.

WINDMEIER & BARRON 2010

WINDMEIER, C.; BARRON, R. F.: *Cryogenic Technology. Ullmann's encyclopedia of industrial chemistry*. Weinheim und Wiley online library: WILEY-VCH, 2010, S. 1–71. ISBN: 9783527306732. DOI: 10.1002/14356007.b03_20.pub2.

WOLFF & SKOGESTAD 1995

WOLFF, E. A.; SKOGESTAD, S.: *Operation of Integrated Three-Product (Petlyuk) Distillation Columns*. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 34.6 (1995), S. 2094–2103. ISSN: 0888-5885. DOI: 10.1021/ie00045a018.

WONG & LUUS 1980

WONG, K. T.; LUUS, R.: *Model reduction of high-order multistage systems by the method of orthogonal collocation*. The Canadian Journal of Chemical Engineering 58.3 (1980), S. 382–388. ISSN: 00084034. DOI: 10.1002/cjce.5450580315.

WORLD BANK 2005

WORLD BANK: *Primer on Demand-Side Management : With an Emphasis on Price-Responsive Programs*. Hrsg. von LICENSE: CC BY 3.0 IGO. Washington, DC, © World Bank, 2005. URL: <https://openknowledge.worldbank.org/handle/10986/8252>.

WUNDERLICH 2018

WUNDERLICH, B.: *Entwicklung eines druckgetriebenen dynamischen Kolonnenmodells zur Erhöhung der Flexibilität von kryogenen Luftzerlegungsanlagen: Dissertation*. Karlsruhe: KIT Scientific Publishing, 2018. ISBN: 9783731507604. DOI: 10.5445/KSP/1000080378.

WUNDERLICH ET AL. 2015

WUNDERLICH, B.; FERSTL, J.; GOLUBEV, D.; WINDMEIER, C.; GROHMANN, S.: *Lastflexibilisierung einer Luftzerlegungsanlage: Deutsche Kälte- und Klimatagung*. Dresden, 2015. DOI: 10.13140/RG.2.1.2775.3364.

ZHANG ET AL. 2015

ZHANG, Q.; GROSSMANN, I. E.; HEUBERGER, C. F.; SUNDARAMOORTHY, A.; PINTO, J. M.: *Air separation with cryogenic energy storage: Optimal scheduling considering electric energy and reserve markets*. AIChE Journal 61.5 (2015), S. 1547–1558. ISSN: 00011541. DOI: 10.1002/aic.14730.

ZHANG ET AL. 2016a

ZHANG, Q.; GROSSMANN, I. E.; PINTO, J. M.: *Optimal Demand Side Management for Cryogenic Air Separation Plants. Advances in Energy Systems Engineering*. Hrsg. von G. M. KOPANOS; P. LIU; M. C. GEORGIADIS. Cham: Springer International Publishing, 2016, S. 535–564. ISBN: 978-3-319-42802-4. DOI: 10.1007/978-3-319-42803-1_18.

ZHANG ET AL. 2016b

ZHANG, Q.; GROSSMANN, I. E.; SUNDARAMOORTHY, A.; PINTO, J. M.: *Data-driven construction of Convex Region Surrogate models*. Optimization and Engineering 17.2 (2016), S. 289–332. ISSN: 1389-4420. DOI: 10.1007/s11081-015-9288-8.

ZHANG ET AL. 2016c

ZHANG, Q.; SUNDARAMOORTHY, A.; GROSSMANN, I. E.; PINTO, J. M.: *A discrete-time scheduling model for continuous power-intensive process networks with various power contracts*. Computers & Chemical Engineering 84 (2016), S. 382–393. ISSN: 00981354.

ZHAO ET AL. 2019

ZHAO, S.; OCHOA, M. P.; TANG, L.; LOTERO, I.; GOPALAKRISHNAN, A.; GROSSMANN, I. E.: *Novel Formulation for Optimal Schedule with Demand Side Management in Multiproduct Air Separation Processes*. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 58.8 (2019), S. 3104–3117. ISSN: 0888-5885. DOI: 10.1021/acs.iecr.8b04964.

ZHU ET AL. 2001

ZHU, G.-Y.; HENSON, M. A.; MEGAN, L.: *Low-order dynamic modeling of cryogenic distillation columns based on nonlinear wave phenomenon*. *Separation and Purification Technology* 24.3 (2001), S. 467–487.

ZHU ET AL. 2011a

ZHU, Y.; LEGG, S.; LAIRD, C. D.: *A multiperiod nonlinear programming approach for operation of air separation plants with variable power pricing*. *AIChE Journal* 57.9 (2011), S. 2421–2430. ISSN: 00011541. DOI: 10.1002/aic.12464.

ZHU ET AL. 2011b

ZHU, Y.; LEGG, S.; LAIRD, C. D.: *Optimal operation of cryogenic air separation systems with demand uncertainty and contractual obligations*. *Chemical Engineering Science* 66.5 (2011), S. 953–963. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/j.ces.2010.11.039.

ZUIDERWEG 1982

ZUIDERWEG, F. J.: *Sieve trays: A view on the state of the art*. *Chemical Engineering Science* 37.10 (1982), S. 1441–1464. ISSN: 00092509. DOI: 10.1016/0009-2509(82)80001-8.