

1 Einleitung und Zielsetzung

Die Trennung von Flüssigkeits-Gemischen mittels *Pervaporation* durch Polymer-Membranen ist eine interessante Alternative zur Destillation, speziell, wenn die Aufgabe darin besteht, Substanzen zu trennen die temperaturempfindlich sind, sehr ähnliche Siedepunkte aufweisen, oder gar ein azeotropes Gemisch bilden. Im Gegensatz zur dann besonders energie-aufwändigen Separation aufgrund des Siedepunktes, werden bei der Pervaporation die Wechselwirkungen der beteiligten Substanzen mit einem Membranmaterial zur Trennung genutzt. Diese können sich selbst bei ähnlich siedenden Flüssigkeiten deutlich unterscheiden, was eine effektive und energie-effiziente Anreicherung einer der beteiligten Komponenten ermöglicht.

Die Erzeugung absoluten Ethanol (d. h. Entfernung der letzten Procente Wassergehalt) mittels Pervaporation ist z. B. mit Poly(vinylalkohol)-Membranen möglich. Weitere Anwendungsgebiete der Pervaporation sind beispielsweise die Reinigung von Abwässern, die Extraktion von Ethanol oder Aromastoffen aus einem Bio-Reaktor oder die Anreicherung hochverdünnter Substanzen in der Spurenanalytik. [1]

Eine noch nicht optimal gelöste Aufgabe stellt bislang unter anderem die membranbasierte Trennung von Gemischen aus Aromaten und Aliphaten dar. So ist die Entfernung von karzinogenem Benzol¹ aus „Benzin“ (in der Regel Aliphaten, wie Octan, Heptan usw.) wünschenswert, jedoch wurden bislang keine Membranmaterialien gefunden, die eine wirtschaftlich attraktive Trennleistung² von Aromaten und Aliphaten erzielen. [2]

Der Haupt-Aspekt der vorliegenden Arbeit besteht in der Unterstützung der Performance-Vorhersage von membranbasierten Trennungssystemen. Eine Voraussetzung hierfür ist die Kenntnis der *Löslichkeit* von unterschiedlichen organischen Molekülen

¹Benzol: C₆H₆, ein Aromat. Die zulässige Konzentration von Benzol in Otto-Kraftstoffen beträgt derzeit maximal 1% (gemäß EN 228).

²Derzeit kann bei einem Anreicherungsfaktor von 4–6 der Benzol-Gehalt von 3% auf unter 1% gesenkt werden; dabei gehen jedoch auch gewisse Anteile des Benzins verloren.

in den Polymermaterialien. Die hierfür bislang verfügbaren Berechnungsmethoden unterliegen gewissen konzeptionellen Beschränkungen (siehe 2.6.1), daher werden derzeit neue Methoden ohne besagte Limitierungen gesucht. Ziel ist die Berechnung der Löslichkeit, ausgehend von einem detailliert-atomistischen Modell des jeweiligen Polymer-Materials; eine Aufgabe, die bislang noch nicht zufriedenstellend gelöst ist:

Despite the fact that [...], the extension of solubility calculations to larger molecules or molecules exhibiting long-range interactions has not yet succeeded satisfactorily. (Nick, Suter, 2001 [3])

Die experimentell zugängliche Löslichkeit leitet sich aus dem *chemischen Exzesspotential* ab welches mittels der „*direct particle deletion*“ (DPD) Methode [4, 5, 6, 7] berechnet werden kann. Diese, ursprünglich zur Untersuchung von Phasengleichgewichten entwickelte und publizierte Methode, war bislang nur auf spezielle, vor allem akademisch interessante Systeme (z. B. flüssiges Argon, strukturell vereinfachtes Ethanol in Wasser oder strukturell vereinfachtes, flüssiges Benzol) anwendbar. Die notwendigen Anforderungen an eine *verallgemeinerte* Version der DPD Methode sind in Abschnitt 3.1.1 aufgeführt. Der weitere Verlauf von Kapitel 3 beschreibt die durchgeführten Schritte der Generalisierung detailliert. Zuvor werden in Kapitel 2 einige relevante Grundlagen der verwendeten, atomistischen Simulationstechnik beschrieben.

Zur Überprüfung der Qualität der verallgemeinerten Methode sollen in dieser Arbeit zunächst einige, konkrete Materialien detailliert untersucht und die berechneten Löslichkeiten mit experimentellen Messungen verglichen werden; dies ist der hauptsächliche Gegenstand von Kapitel 4. Zu einem späteren Zeitpunkt soll auch die Vorhersage der Transport-Parameter für andere, *hypothetische* Polymermaterialien möglich sein.

Zukünftige Anwendungsfelder der Vorhersage von polymeren Transporteigenschaften wären neben der technischen Stofftrennung beispielsweise im Bereich Mobilität (Brennstoffzelle) oder Medizin (*controlled drug release*, Bio-Abbau) denkbar.