

Systematische Verfahrensentwicklung für pflanzlich basierte Produkte im regulatorischen Umfeld

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)

vorgelegt von
Dipl.-Ing. Simon Both
aus Hamburg

genehmigt von der Fakultät für Mathematik / Informatik und Maschinenbau der
Technischen Universität Clausthal

Tag der mündlichen Prüfung
18. Sept. 2014

Vorsitzender der Promotionskommission

Prof. Dr.-Ing. Norbert Müller

Technische Universität Clausthal

Hauptberichterstatter

Prof. Dr.-Ing. Jochen Strube

Technische Universität Clausthal

Mitberichterstatter

Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. Hans-Jörg Bart

Technische Universität Kaiserslautern

Thermische Verfahrens- und Prozesstechnik

Simon Both

**Systematische Verfahrensentwicklung für pflanzlich
basierte Produkte im regulatorischen Umfeld**

D 104 (Diss. TU Clausthal)

Shaker Verlag
Aachen 2015

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

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

Zugl.: Clausthal, Techn. Univ., Diss., 2014

Copyright Shaker Verlag 2015

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-3727-2

ISSN 2193-6560

Shaker Verlag GmbH • Postfach 101818 • 52018 Aachen
Telefon: 02407 / 95 96 - 0 • Telefax: 02407 / 95 96 - 9
Internet: www.shaker.de • E-Mail: info@shaker.de

Danksagung

Diese Dissertation zeigt das Ergebnis meiner Forschungen als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Thermische Verfahrens- und Prozesstechnik (ITVP) der Technischen Universität Clausthal. Sie wäre ohne das Engagement des wissenschaftlichen, betrieblichen wie privaten Umfeldes nicht in dieser Weise möglich gewesen. Deshalb allen, die mich unterstützten, an dieser Stelle herzlichen Dank!

Mein besonderer Dank gilt meinem Mentor und Doktorvater Prof. Dr.-Ing. Jochen Strube, der mich stets unterstützt, beraten und ermutigt hat. Dies gilt in fachlicher wie persönlicher Hinsicht. Er war Orientierung und Kommunikator in schwierigen Situationen. Ihm gebührt daher mein größter Respekt.

Danken möchte ich Prof. Dr.-Ing. Norbert Müller für die Übernahme des Vorsitzes der Prüfungskommission und Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. Hans-Jörg Bart für die Mitberichterstattung. Par ailleurs, je voudrais remercier le Pr. Farid Chemat et son équipe pour leur accueil convivial et leur appui pendant mes recherches à l'Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse sowie Prof. Dr.-Ing. Alfons Vogelpohl für die fachliche Unterstützung und die stets „offene Tür“.

Für die gemeinsame Projektarbeit und die wertvollen fachlichen Diskussionen und Beiträge vielen Dank auch den Mitarbeitern der

- BMA Braunschweigische Maschinenbauanstalt AG, Braunschweig
- Firmenich SA, Genf, und
- Plantextrakt GmbH & Co. KG, Vestenbergsgreuth

Dankbar bin ich dem ITVP der TU Clausthal. Ohne die Unterstützung der Institutsleitung, aller Mitarbeiter des Hauses und meiner Kollegen wäre der Erfolg so nicht realisierbar gewesen. Für ihre unerschöpfliche Hilfsbereitschaft seien hier meine Freunde und Kollegen Christoph Helling, Dr. Holger Fröhlich und Dr. Jan Eggersgluß erwähnt. Ich danke euch auch für die fachlichen Anregungen und den unschätzbaren Beitrag daran, dass mir Clausthal in schöner Erinnerung bleiben wird.

Auch den Doktoranden der ersten Generation, deren Ergebnisse meinen Arbeiten zugrunde lagen, meinen Dank. Ganz besonders gilt dies für Dr. Jan Pablo Josch und Dr. Markus Kaßing, die stets für die Beantwortung meiner Fragen und für hilfreiche Gespräche zur Verfügung standen.

Den wissenschaftlichen Mitarbeitern des Institutes danke ich für ihre uneingeschränkte Unterstützung. Ausdrücklich spreche ich Iraj Koudous an, der sowohl durch seine Studien- und Diplomarbeit als auch durch die Überschneidung unserer Themengebiete und die vielen Diskussionen zum Erfolg meiner Arbeit beigetragen hat.

Last, but not least Dank den technischen Mitarbeitern und dem Sekretariat für die Einsatzbereitschaft und das Engagement sowie meinen Diplomanden und den studentischen Hilfskräften, denn sie haben nicht nur zur vorliegenden Arbeit ihren Beitrag geleistet, sondern auch zum wissenschaftlichen Fortschritt der Arbeitsgruppe stets beigetragen.

Allschwil, Mai 2015

Simon Both

Inhaltsverzeichnis

| | |
|---|-----------|
| 1. Einleitung und Motivation | 1 |
| 2. Stand der Technik..... | 6 |
| 2.1. Komplexe Gemische..... | 6 |
| 2.2. Modellierung und weitere systematische Auslegungsmethoden | 6 |
| 2.2.1. <i>Statistische Versuchsplanung - Design of Experiment</i> | 7 |
| 2.2.2. <i>Short-Cut und Graphische Methoden</i> | 8 |
| 2.2.3. <i>Physikochemische Modellierung</i> | 8 |
| 2.2.4. <i>Distributed Plug Flow-Model</i> | 9 |
| 2.2.5. <i>Dimensionslose Kennzahlen</i> | 11 |
| 2.3. Beschreibung der Diffusion..... | 12 |
| 2.3.1. <i>Der Fick'sche Ansatz</i> | 13 |
| 2.3.2. <i>Der Maxwell-Stefan Ansatz</i> | 14 |
| 2.3.3. <i>Berechnung der Diffusionskoeffizienten</i> | 17 |
| 2.3.4. <i>Der Thermodynamischer Faktor</i> | 17 |
| 2.3.5. <i>Bestimmung der Aktivitätskoeffizienten: UNIFAC Modell</i> | 18 |
| 2.4. Zucht und Ernte des Rohstoffes | 19 |
| 2.5. Feststoffextraktion..... | 20 |
| 2.5.1. <i>Extraktionsverfahren</i> | 20 |
| 2.5.2. <i>Modellierung</i> | 23 |
| 2.6. Grundoperationen der Aufreinigung | 26 |
| 2.6.1. <i>Flüssig-Flüssig Extraktion</i> | 26 |
| 2.6.2. <i>Destillation</i> | 28 |
| 2.6.3. <i>Chromatographie</i> | 29 |
| 3. Material und Methoden..... | 32 |
| 3.1. Rohstoff..... | 32 |
| 3.1.1. <i>Schwarzer Tee</i> | 32 |
| 3.1.2. <i>Zuckerrübe</i> | 33 |
| 3.1.3. <i>Eibe</i> | 34 |

| | |
|---|-----------|
| 3.2. Equipment..... | 35 |
| 3.2.1. Feststoffextraktion..... | 35 |
| 3.2.2. Aufreinigung..... | 37 |
| 3.3. Analytik | 38 |
| 4. Einsatzgebiete und regulatorisches Umfeld..... | 44 |
| 4.1. Vorschriften und Richtlinien | 44 |
| 4.2. Botanische Charakterisierung..... | 51 |
| 4.3. Equipment und Strategie | 53 |
| 5. Feststoffextraktion | 58 |
| 5.1. Referenzprozesse..... | 58 |
| 5.1.1. Schwarzer Tee..... | 58 |
| 5.1.2. Zuckerrübe | 59 |
| 5.1.3. Eibe | 61 |
| 5.2. Modellierung | 62 |
| 5.3. Botanische und physikochemische Modellparameter..... | 62 |
| 5.3.1. Gleichgewicht..... | 63 |
| 5.3.2. Stoffaustauschkinetik..... | 67 |
| 5.3.3. Fluidynamik: Axiale Dispersion | 71 |
| 5.3.4. Partikelgrößenverteilung | 74 |
| 5.3.5. Matrixstruktur und Porengeometrie..... | 77 |
| 5.3.6. Beladungsverteilung..... | 78 |
| 5.3.7. Einfluss des rohstoffgebundenen Wassers..... | 80 |
| 5.4. Modellvalidierung und Simulation | 85 |
| 5.4.1. Schwarzer Tee..... | 85 |
| 5.4.2. Zuckerrübe | 86 |
| 5.4.3. Eibe | 88 |
| 5.5. Bewertung des Extraktionsapparates bzw. –prozesses | 90 |
| 5.5.1. Auswahl des Equipments..... | 90 |
| 5.5.2. Reinheit und Ausbeute..... | 94 |
| 5.5.3. Optimierung bestehender Prozesse | 96 |

| | |
|--|------------|
| 6. Aufreinigungsstrategien | 98 |
| 6.1. Quantifizierung des Extraktes über Stoffdaten | 101 |
| 6.2. Aufreinigung von Teeextrakten in der Literatur..... | 103 |
| 6.3. Stoffdatenbasierte Auswahl der Grundoperationen..... | 104 |
| 6.3.1. <i>Polarität und Flüssig-Flüssig Gleichgewichte</i> | 107 |
| 6.3.2. <i>Siedepunkte und Gas-Flüssig Gleichgewichte</i> | 109 |
| 6.3.3. <i>Molekulargewicht</i> | 111 |
| 6.3.4. <i>Isoelektrischer Punkt / Dissoziationskonstante</i> | 112 |
| 6.3.5. <i>Einordnung der Inhaltsstoffe / Auswahl des Trennprinzips</i> | 113 |
| 6.4. Modellbasierte Auslegung am Beispiel Teeextraktaufreinigung..... | 114 |
| 6.4.1. <i>Flüssig-Flüssig Extraktion</i> | 114 |
| | |
| 7. Zusammenfassung | 117 |
| | |
| 8. Literaturverzeichnis..... | 120 |
| | |
| 9. Symbolverzeichnis | 136 |
| | |
| 10. Abbildungsverzeichnis | 138 |
| | |
| 11. Tabellenverzeichnis..... | 141 |