

## Masterarbeit

# Einfluss der Strom-/Spannungs-Charakteristik eines Rohrnasselektrofilters auf die absorptive Abscheidung von $\text{SO}_x$ und $\text{NO}_x$

Ausgeführt zur Erlangung des  
akademischen Grades des Diplom-Ingenieurs

der Studienrichtung Verfahrenstechnik

am Institut für  
Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik  
der Technischen Universität Graz

unter der Leitung von

Mag. rer. nat. Dr. techn. Peter Letonja  
Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. Matthäus Siebenhofer

Eingereicht von  
BSc. Theo Friedrich

## Danksagung

Ich möchte mich bei allen MitarbeiterInnen des Instituts für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik bedanken, die mir immer hilfreich zur Seite standen, und die durch das angenehme Arbeitsklima dazu beitrugen, dass ich immer wieder gerne an die Zeit, die ich dort verbracht habe, zurückdenken werde.

Ganz besonders möchte ich mich bei Prof. Siebenhofer und Dr. Letonja für die Vergabe dieses sehr interessanten Themas und die Betreuung danken.

Des Weiteren bedanke ich mich bei all meinen Freunden und StudienkollegInnen, die mich stets motiviert und unterstützt haben. Abschließend möchte ich mich bei meiner Familie bedanken, ohne die ich wohl kaum bis zum Studienabschluss gekommen wäre.

## EIDESSTATTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen/Hilfsmittel nicht benutzt, und die den benutzten Quellen wörtlich und inhaltlich entnommene Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Graz, am \_\_\_\_\_

\_\_\_\_\_

Theo Friedrich

## Kurzfassung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war, die Oxidation und Abscheidung von Stickstoffoxiden, Schwefeloxiden und Methan im Coronareaktor mit nachgeschaltetem Füllkörperabsorber zu untersuchen. Der untersuchte Coronareaktor basiert auf dem Prinzip des Rohnasselektrofilters wobei die Sprühelektrode als Bürstenelektrode ausgeführt ist. Durch die geänderte Elektrodengeometrie erfolgt eine vermehrte Ozonbildung in der Coronaentladung. Die Oxidation gasförmiger Schadstoffe erfolgt in der aktiven Coronazone mit Sauerstoff oder Ozon, sowie außerhalb der aktiven Zone mit gebildetem Ozon. Die Abscheidung von Partikeln, etwa dem in dieser Arbeit als Oxidationsprodukt auftretendem Schwefelsäureaerosol, erfolgt im elektrischen Feld.

In der experimentellen Untersuchung wurde die Oxidation von Stickstoffmonoxid, Schwefeldioxid und Methan im Spannungsbereich von 12 bis 22 [kV] untersucht, sowie die Abscheidung der Oxidationsprodukte ermittelt. In Voruntersuchungen wurde die Ozonbildung bestimmt.

Die Reaktionskinetik der Oxidation wurde basierend auf einem reaktionskinetischen Ansatz unter Berücksichtigung des spezifischen Coronastromes ermittelt. Die Untersuchung zeigt, dass die Oxidation von Stickstoffmonoxid im Coronareaktor über einen weiten Bereich als Reaktion erster Ordnung angesehen werden kann.

Zur Beurteilung der energetischen Effizienz der Anlage wurde der spezifische Energiebedarf ermittelt. Für die Ozonbildung ergab sich ein spezifischer Energiebedarf knapp unter zehn [Wh/g], für die Oxidation von Stickstoffmonoxid ergab sich der spezifische Energiebedarf, abhängig vom Gasdurchsatz, der Feedkonzentration und der Betriebsspannung, zwischen 50 und 100 [Wh] pro Gramm oxidiertem Stickstoffmonoxid. Zur Beschreibung der Strom-/Spannungs-Charakteristik der Bürstenelektrode wurde die Theorie der kleinen Ströme adaptiert und eine Parameteranpassung durchgeführt.

## Abstract

The aim of this thesis was to investigate the oxidation and precipitation of nitrogen oxides, sulfur oxides and methane in a corona reactor combined with a downstream packed scrubber. The corona reactor is based on the tubular wet-type electrostatic precipitator, with a brush-type electrode. Due to the new electrode geometry, ozone is generated by the corona discharge. The ozone is used to oxidize gaseous pollutants. Beside the oxidation with ozone, the direct oxidation with oxygen occurs in the active corona zone. The precipitation of particles, like sulfuric acid mist, occurs in the electric field.

The oxidation of nitrogen monoxide, sulfur dioxide and methane was studied at operation voltages between 12 and 22 [kV]. In preliminary studies ozone formation was determined.

A corona current-based approach was used to model the reaction kinetics. The experimental results show, that the oxidation of nitrogen monoxide in the corona reactor can be modeled as a first order reaction.

To assess the energy efficiency of the system, the specific energy demand was calculated. For ozone formation a specific energy consumption of about ten [Wh/g] was determined. For oxidation of nitrogen monoxide a specific energy consumption between 50 and 100 [Wh/g], depending on the gas velocity, the feed concentration and the operation voltage was determined. The current-/voltage-characteristics cannot be described by the conventional equations. Therefore the theory of small currents was adapted.

---

## Nomenklatur

A	Stoffaustauschfläche	[m <sup>2</sup> ]
B	Gleichungsparameter	
C	Partikelkonzentration	[m <sup>-3</sup> ]
c	Konzentration	[g/l, mol/l]
D <sub>ij</sub>	Diffusionskoeffizient	[m <sup>2</sup> /s]
g	Erdbeschleunigung	[m/s <sup>2</sup> ]
E	Elektrische Feldstärke	[V/m]
E <sub>0</sub>	Coronaeinsatzfeldstärke	[kV/m]
E <sub>0,korr</sub>	Korrigierte Coronaeinsatzfeldstärke	[kV/m]
F <sub>A0</sub>	Stoffmengenstrom	[mmol/h]
f	Fallfilmdicke	[mm]
H <sub>ij</sub>	Henry-Konstante	[bar]
I	Strom	[mA]
I <sub>spez</sub>	Spezifischer Coronastrom	[mA/m]
k, k <sub>1</sub> , k <sub>2</sub>	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	[mmol/mA·h]
K	Ionenbeweglichkeit	$\left[\sqrt{m^3/kg}\right]$
L	Elektrodenlänge	[m]
m	Gleichungsexponent	
n	Reaktionsordnung	
$\dot{n}_i$	Molenstrom	[kmol/m <sup>2</sup> ·s]
p	Druck	[bar]
p <sub>0</sub>	Druck	[bar]
Q	Elektrische Ladung	[A·s]
R	Rohrdurchmesser	[mm]
R <sup>2</sup>	Bestimmtheitsmaß	
r <sub>A</sub>	Reaktionsgeschwindigkeit	[mmol/mA·h]
r <sub>0</sub>	Elektrodenradius	[mm]
r <sub>el</sub>	Bürstendurchmesser	[mm]
r <sub>w</sub>	Drahtdurchmesser	[mm]
T	Temperatur	[K]
T <sub>0</sub>	Temperatur	[K]
U	Betriebsspannung	[kV]
U <sub>0</sub>	Coronaeinsatzspannung	[kV]

---

$U_{\max}$	Durchschlagsspannung	[kV]
$v$	Gasgeschwindigkeit	[m/s]
$V$	Volumen	[m <sup>3</sup> ]

### Griechische Buchstaben

$\beta$	Stoffübergangskoeffizient	[m/s]
$\delta$	Grenzschichtdicke	[m]
$\epsilon$	Permittivität des Gases	[A·s/(V·m)]
$\Lambda$	Molare Leitfähigkeit	[S cm <sup>2</sup> /mol]
$\lambda$	Molare Grenzleitfähigkeit	[S cm <sup>2</sup> /mol]
$\nu_{\text{H}_2\text{O}}$	Kinematische Viskosität	[m <sup>2</sup> /s]
$\rho$	Dichte	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\rho$	Raumladungsdichte	[A·s/m <sup>3</sup> ]
$\rho_i$	Ionenraumladungsdichte	[A·s/m <sup>3</sup> ]
$\rho_p$	Partikelraumladungsdichte	[A·s/m <sup>3</sup> ]

---

# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Aufgabenstellung .....	1
2	Grundlagen .....	2
2.1	Aufbau und Funktionsprinzip eines Elektrofilter .....	2
2.2	Coronaentladung und Teilchenaufladung .....	4
2.3	Abscheidung von Aerosolen .....	8
2.4	Auslegungsalgorithmus eines Elektrofilters .....	9
2.5	Experimentelle Konzepte des Coronareaktors .....	10
2.6	Absorption .....	11
2.6.1	Stoffübergang .....	11
3	Stoffsystem und Reaktionsmechanismen .....	14
3.1	Ozonbildung .....	14
3.1.1	Ozonbildung im Elektrofilter .....	15
3.2	Reaktionsmechanismen im Coronareaktor .....	15
3.3	Reaktion und Absorption von Stickstoffoxiden .....	15
3.3.1	Reaktionsmechanismen von Stickstoffoxiden .....	16
3.3.2	Löslichkeit von Stickstoffoxiden .....	17
3.3.3	Absorptionsmechanismen von Stickstoffoxiden .....	17
3.4	Reaktionsmechanismus und Absorption von Schwefeldioxid .....	18
4	Versuchsaufbau .....	20
4.1	Charakterisierung des Coronareaktors und der Hochspannungsversorgung .....	22
4.1.1	Elektrode .....	22
4.2	Auslegung des gepackten Gaswäschers .....	23
4.3	Gasweg .....	24
4.3.1	Gaszusammensetzung .....	24
4.4	Flüssigkeitskreislauf .....	25

---

4.4.1	Leitfähigkeit der Flüssigphase .....	26
4.5	Messtechnik und Probenahme.....	26
4.5.1	Gasanalysator Limas 11 UV .....	27
4.5.2	Ozonmessung .....	27
4.5.3	Weitere Messtechnik .....	28
5	Experimentelle Untersuchung.....	29
5.1	Generelle Versuchsdurchführung .....	29
5.2	Untersuchung des Strom-/Spannungs-Verhaltens bei reiner Luft.....	30
5.2.1	Untersuchung auf Alterungseffekte der Elektrode .....	31
5.3	Ozonbildung in der aktiven Coronazone .....	31
5.4	Oxidation und Abscheidung von Stickstoffmonoxid .....	34
5.4.1	Vorversuche.....	35
5.4.2	Untersuchung der Oxidation von Stickstoffmonoxid .....	36
5.4.3	Einfluss des Gaswäschers auf die Oxidation von Stickstoffmonoxid.....	44
5.4.4	Strom-/Spannungs-Charakteristik bei Stickstoffmonoxidzufuhr.....	45
5.4.5	Salpetersäurekonzentration und Massenbilanz über das Gesamtsystem .....	46
5.4.6	Zusammenfassung der Versuche zur Stickstoffoxidabscheidung .....	49
5.5	Oxidation und Abscheidung von Schwefeldioxid und Schwefeltrioxid .....	50
5.5.1	Vorversuche.....	50
5.5.2	Strom-Spannungs-Charakteristik bei der Zufuhr von Schwefeldioxid .....	51
5.5.3	Abscheidung von Schwefeldioxid .....	52
5.5.4	Restozonkonzentration im Gas .....	55
5.5.5	Schwefelsäurekonzentration und Massenbilanz über das Gesamtsystem .....	56
5.6	Oxidation von Methan.....	57
6	Modellierung des Coronareaktors.....	58
6.1	Vergleich und Modellierung der Strom-/Spannungs-Charakteristiken.....	58
6.1.1	Vergleich der einzelnen Strom-/Spannungs-Korrelationen .....	59

---

---

6.2	Spezifischer Energiebedarf .....	62
6.2.1	Energiebedarf der Ozonbildung .....	62
6.2.2	Spezifischer Energiebedarf der Oxidation von Stickstoffmonoxid .....	63
6.3	Modellierung der Oxidation .....	66
7	Zusammenfassung.....	73
8	Literaturverzeichnis.....	75
9	Anhang.....	77
9.1	Stoffdaten.....	77
9.2	Fallfilmdicke.....	78
9.3	Auslegung der Füllkörperkolonne .....	79
9.4	Leitfähigkeitsberechnung .....	81
9.5	Korrektur Gasdurchsatz.....	82
9.6	Versuchsdatensätze.....	83
9.6.1	Ozonbildung .....	83
9.6.2	Oxidation von Schwefeldioxid .....	84
9.6.3	Oxidation von Stickstoffmonoxid .....	85
9.7	Spezifischer Energiebedarf .....	90
9.8	Fitkurven und Reaktionskinetische Auswertung.....	94

## 1 Einleitung und Aufgabenstellung

Der Rohrnasselektrofilter stellt ein etabliertes Verfahren zur Staubabscheidung aus Gasen dar. Durch eine Modifikation der Elektrodengeometrie kann der Elektrofilter zum Coronareaktor adaptiert werden. Dadurch ist neben der Partikelabscheidung im elektrischen Feld die Oxidation gasförmiger Schadstoffe in der Coronaentladung und durch gebildetes Ozon sowie die folgende Abscheidung möglich. Damit wird es ermöglicht, gasförmige und partikuläre Schadstoffe in einem Prozessschritt abzuscheiden. Die Abtrennung von gasförmigen Schadstoffen, wie Stickstoffoxiden, Schwefeloxiden und Kohlenwasserstoffen, und die Abtrennung partikulärer Schadstoffe aus industriellen Abgasen erfolgt in der technischen Ausführung größtenteils in separaten Prozessschritten.

Diese Arbeit befasst sich mit der Oxidation und Abscheidung von Stickstoffoxiden, Schwefeloxiden und Methan in einer Versuchsanlage bestehend aus einem Coronareaktor mit nachgeschaltetem Gaswäscher. Für die Durchführung dieser Arbeit ist der bestehende Aufbau des Coronareaktors zu modifizieren und die Anlage um einen Gaswäscher zu erweitern. Der Umsatz an Stickstoffmonoxid, Schwefeldioxid und Methan im Coronareaktor ist zu untersuchen, und durch eine Bilanz um das Gesamtsystem die Abscheiderate für die gesamten Stickstoffoxide und Schwefeloxide zu bestimmen.

Auf Basis der Messergebnisse ist ein Modellierungsansatz zur Beschreibung der Reaktionskinetik der Oxidationsreaktion und zur Beschreibung des Strom-Spannungs-Verhaltens zu entwickeln. Ein wichtiges Kriterium zur Beurteilung der technischen und ökonomischen großtechnischen Realisierung ist der Energiebedarf zur Oxidation. Dementsprechend ist der spezifische Energiebedarf zur Ozonbildung und des Weiteren der spezifische Energiebedarf zur Oxidation von Stickstoffmonoxid zu berechnen.

## 2 Grundlagen

Der in dieser Arbeit experimentell untersuchte Coronareaktor basiert auf dem Prinzip des Rohrnasselektrofilters. Dementsprechend stellt das Funktionsprinzip des Elektrofilters, sowie die Beschreibung der Coronaentladung einen wesentlichen Aspekt dieser Arbeit dar, und ist in den folgenden Kapiteln zusammengefasst.

### 2.1 Aufbau und Funktionsprinzip eines Elektrofilter

Der Elektrofilter ist ein Apparat zur Abscheidung von Partikeln aus einem Gas unter der Nutzung elektrischer Kräfte. Das Funktionsprinzip des Elektrofilters kann in drei grundlegende Vorgänge gegliedert werden:

- die elektrische Aufladung der Partikel
- die Abscheidung der geladenen Partikel im elektrischen Feld, und
- das Abreinigen von abgelagertem Staub von der Niederschlagselektrode.

Die Aufladung der Partikel vor der Abscheidung ist nötig, da die natürliche Ladung der meisten Teilchen zu gering ist, um diese im elektrischen Feld abzuscheiden. Diese Aufladung kann mit verschiedenen Methoden durchgeführt werden, die Aufladung im elektrischen Feld unter Anwendung der Coronaströme ist die wirksamste. Das elektrische Feld wird meist zwischen einem dünnen, an die Hochspannungsversorgung angeschlossenen, Draht, der Sprühelektrode, und der zylindrischen oder plattenförmigen geerdeten Niederschlagselektrode aufgebaut (Abbildung 2-1). Zur Spannungsversorgung eines Elektrofilters bestehen verschiedene Möglichkeiten. Meist werden Elektrofilter mit negativer Gleichspannung betrieben, daneben besteht die Möglichkeit zum Betrieb mit positiver Gleichspannung, oder zum gepulsten Betrieb, wiederum mit negativer oder positiver Gleichspannung. Die Wahl der Spannungsversorgung hat neben anderen Parametern einen wesentlichen Einfluss auf die Charakteristik der Coronaentladung und die Bildung von Ozon oder Stickstoffoxiden in der aktiven Entladungszone. Bezüglich der Bauform werden Elektrofilter in Rohr- (Abbildung 2-1) und Plattenelektrofilter (Abbildung 2-2) eingeteilt. Daneben bestehen noch Sonderbauformen wie Raumladungsabscheider mit Abscheiderpackungen.

Rohr- und Plattenelektrofilter können in einstufiger und zweistufiger Bauart ausgeführt werden. In einem einstufigen Elektrofilter findet die Aufladung und Abscheidung der Teilchen in demselben elektrischen Feld statt, während in einem zweistufigen Filter die Auflade- und Abscheidestufe getrennt voneinander ausgeführt sind. In Abbildung 2-2 ist das Prinzip eines ein- und zweistufigen Plattenelektrofilters dargestellt. Ein weiteres Einteilungsmerkmal ist die Untergliederung in Nass- und Trockenelektrofilter.

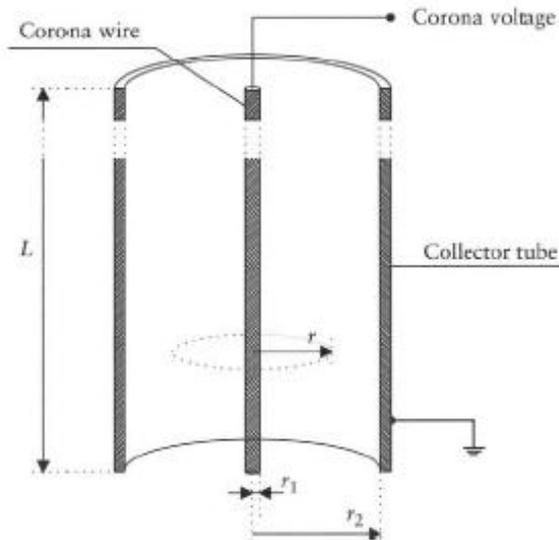


Abbildung 2-1: Prinzip des Rohrelektrofilters, [1]

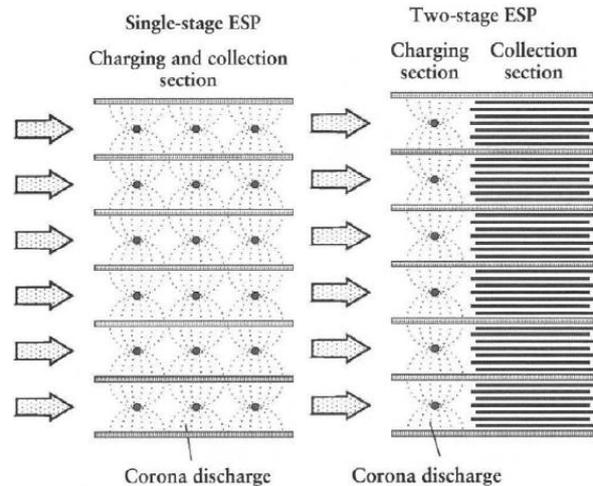


Abbildung 2-2: Plattenelektrofilter in einstufiger und zweistufiger Ausführung, [1]

Trockenelektrofilter lagern den Staub auf der Niederschlagselektrode ab, von der dieser periodisch entfernt wird. Dies erfolgt durch das Abklopfen mit Hammerwerken, oder alternative mechanische Abreinigungsverfahren.

In Nasselektrofiltern wird der abgeschiedene Staub kontinuierlich im Flüssigkeitsfilm gebunden und ausgetragen. Neben der kontinuierlichen Flüssigkeitszufuhr gibt es noch Abscheider mit intermittierender Abreinigung der Niederschlagselektroden mit einer Waschlösung. Der Aufbau des Flüssigkeitsfilms kann über zwei verschiedene Prinzipien erfolgen. Durch kontinuierliches Bespülen der Niederschlagselektrode wird ein Flüssigkeitsfilm mit gleichmäßiger Dicke erzeugt. Dies erfolgt über den Aufbau eines Fallfilms oder durch Sprühdüsen. Alternativ dazu wird im sogenannten Kondensationselektrofilter die Niederschlagselektrode von außen gekühlt, und Wasserdampf aus dem Gas kondensiert. Das Kondensat bildet einen Flüssigkeitsfilm. Zum Betrieb des Kondensationsnasselektrofilters muss dem Gas vor Eintritt in den Elektroabscheider gegebenenfalls Dampf zugeführt werden um eine ausreichende Kondensatmenge zu erzielen.

Die Kraft, die im elektrischen Feld auf die Teilchen im Gasstrom wirkt, wird durch das Coulomb'sche Gesetz beschrieben. Die Kraft ist demzufolge dem Produkt aus der Teilchenladung und der elektrischen Feldstärke proportional. [2; 3]

## 2.2 Coronaentladung und Teilchenaufladung

Gase sind unter Normalbedingungen nahezu ideale elektrische Isolatoren. Ab einer Potentialdifferenz über einem kritischen Wert erfolgt die Ionisierung von Gasmolekülen und die Leitfähigkeit des Gases nimmt mit zunehmendem Ionisierungsgrad zu. Die Entladung wird abhängig von ihrer Form als Funken-, Lichtbogen-, Corona- oder Glimmentladung bezeichnet. Verschiedene Entladungsformen sind in Abbildung 2-3 dargestellt, die Visualisierung der Coronaentladung ist in Abbildung 2-4 ersichtlich.

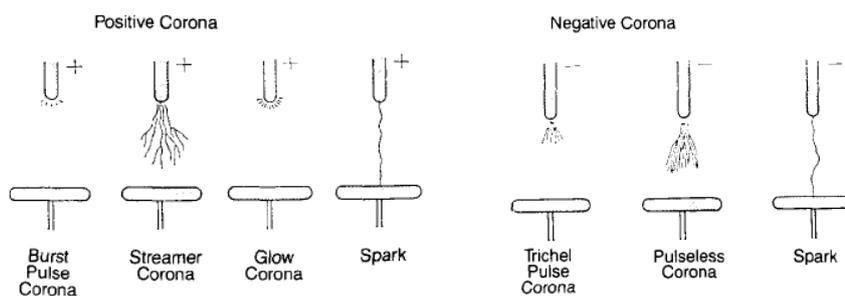


Abbildung 2-3: Coronaentladungsformen, [4]

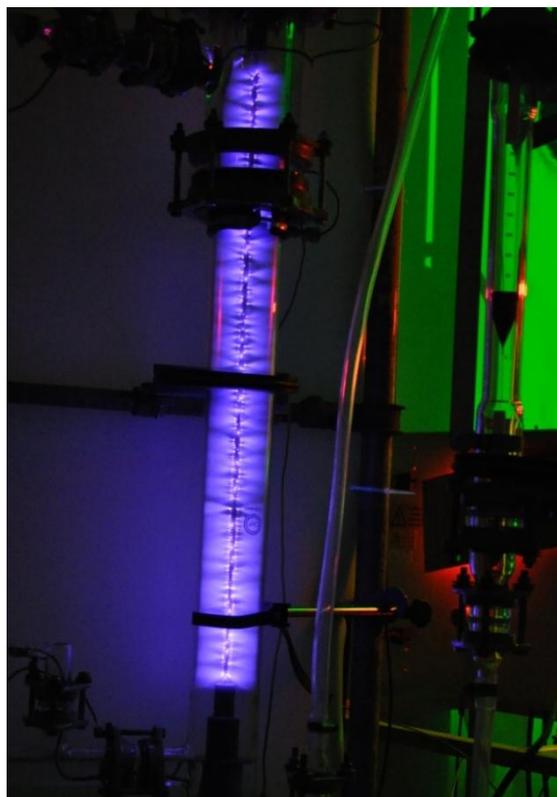


Abbildung 2-4: Coronaentladung im untersuchten Coronareaktor, Innendurchmesser: 76 [mm], Elektrodenlänge: 790 [mm], aktive Elektrodenlänge: 700 [mm]; [5]

Der Ionisierungsprozess beschränkt sich auf den Bereich hoher elektrischer Feldstärke um die Sprühelektrode, der sogenannten aktiven Zone. Abbildung 2-5 zeigt schematisch den Ionisierungsprozess sowie die Aufladung der Partikel im Gasraum. In der Corona ist die Stoßionisation der dominierende Mechanismus zur Ladungsträgererzeugung. Freie Elektronen, die Energie aus dem elektrischen Feld beziehen, prallen mit Gasmolekülen zusammen. Durch den Kollisionsvorgang werden zusätzliche Elektronen freigesetzt. Für diesen Prozess benötigt das stoßende Elektron eine bestimmte Mindestenergie, dies ist die Ionisationsenergie der jeweiligen Atom- oder Molekülspezies mit dem das Elektron kollidiert.

Die physikalischen Materialeigenschaften des Teilchens, über unterschiedliche Dielektrizitätskonstanten, führen zu einem gewissen Einfluss auf den Aufladungsvorgang.

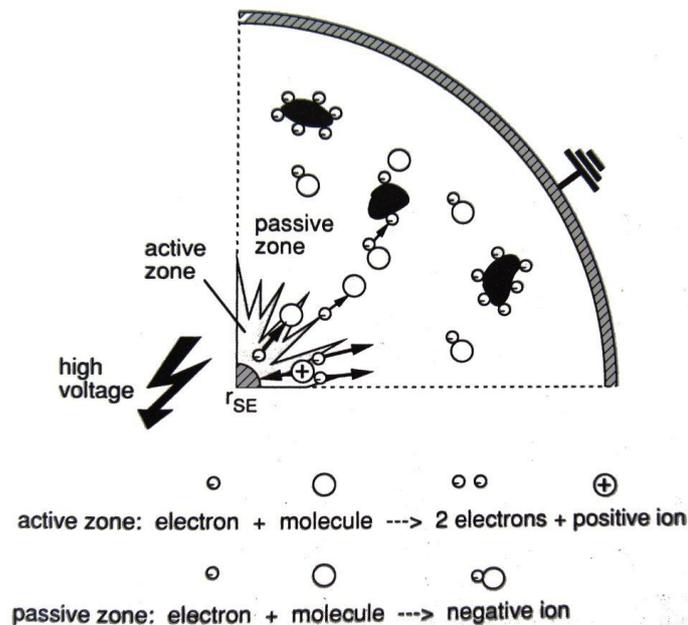


Abbildung 2-5: Prinzip der Coronaentladung und des Ionisierungsprozesses, [3]

### Theoretische Strom-/Spannungs-Beziehungen für Rohrelektrofilter

Die Berechnung des Coronastromes basiert auf der Annahme, dass die aktive Zone im Bereich der Sprühelektrode nur als Ionenquelle dient, und der restliche Raum im Elektroabscheider ausschließlich unipolare Ionen enthält. Diese stellen eine relativ große Raumladung dar, und schirmen das Feld der Coronaentladung ab. Ein Anstieg des Stromes ist unter diesen Bedingungen durch die Raumladung begrenzt. Mit steigender Spannung erhöht sich die elektrische Feldstärke der Coronahaut, gleichzeitig vergrößert sich die Raumladung, wodurch nur ein geringer Anteil der Energie zur

Verstärkung des Ionisierungsprozesses beiträgt. In einer negativen Corona trägt neben den Ionen noch eine große Anzahl von Elektronen zum Stromfluss bei, wodurch eine Korrektur gegenüber den Strom-/Spannungs-Beziehungen für eine positive Corona nötig ist.

Der Coronastrom, beziehungsweise die Strom-/Spannungs-Charakteristik des Elektrofilters, ist abhängig von der Elektrodengeometrie, der Spannungsform, der Gaszusammensetzung, der Gastemperatur, dem Druck, der Polarität, Staubablagerungen an den Elektroden und der Staubkonzentration im Gas. In Abbildung 2-6 und Abbildung 2-7 ist die Abhängigkeit der Strom-/Spannungs-Charakteristik von der Gaszusammensetzung dargestellt.

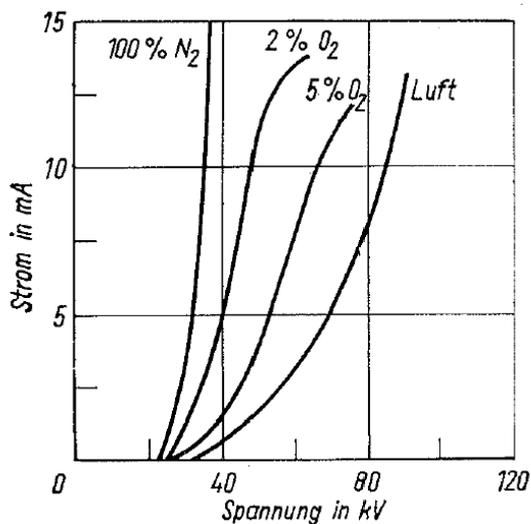


Abbildung 2-6: Strom-/Spannungs-Charakteristiken einer negativen Coronaentladung bei verschiedenen Stickstoff-Sauerstoff-Mischungen; Geometrie:  $R=150$  [mm]  $r=2,8$  [mm]; [2]

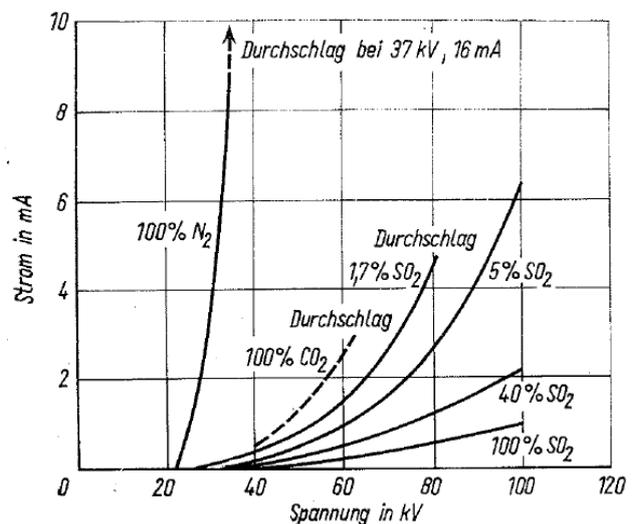


Abbildung 2-7: Strom-/Spannungs-Charakteristiken einer negativen Coronaentladung bei verschiedenen Stickstoff-Schwefeldioxid-Mischungen; Geometrie:  $R=150$  [mm]  $r=2,8$  [mm]; [2]

### Raumladung

Die Vorgänge im Elektrofilter können, neben der klassischen Beschreibung, über raumladungsorientierte Ansätze beschrieben werden. In Abbildung 2-8 sind die einzelnen Vorgänge im Elektroabscheider und ihr Zusammenhang über die Raumladung zusammengefasst. Die Raumladungsdichte  $\rho$  nach Gleichung 2-1 bezieht die elektrische Ladung  $Q$  auf das Gas- oder Aerosolvolumen  $V$ . Es wird zwischen der Ionenraumladungsdichte  $\rho_i$ , deren Träger die Gasionen sind, und der Partikelraumladungsdichte  $\rho_p$  unterschieden.

$$\rho = \rho_i + \rho_p = \rho_i + \frac{C \cdot Q_p}{V} \quad \text{2-1}$$

Durch die hohe Ionenbeweglichkeit ist die Ionenraumladung unabhängig von der Gasströmung. Die Partikelraumladung wird demgegenüber aufgrund der deutlich langsameren Wanderungsgeschwindigkeit der Teilchen von der Gasströmung maßgeblich beeinflusst.

Die Raumladungsdichte ist über den Gauß'schen Satz, beziehungsweise die 1. Maxwell Gleichung, direkt mit der elektrischen Feldstärke nach Gleichung 2-2 gekoppelt, und mit Gleichung 2-3 ergibt sich der Zusammenhang mit der Betriebsspannung des Elektrofilters.

$$\int_A E dA = \frac{1}{\epsilon} \int_V \rho dV \quad \text{bzw.} \quad \text{div } E = \frac{1}{\epsilon} \rho \quad \text{2-2}$$

$$U = \int E ds \quad \text{2-3}$$

Die Betriebsspannung teilt sich demnach in zwei Anteile auf. Den statischen Anteil, der nötig ist um die Coroneinsatzspannung zu erreichen, und dem Anteil, der der Summe aus Ionen- und Partikelraumladung entspricht. Weniger bewegliche Raumladungen in Form von Fremdionen, wie Schwefeldioxid oder gasförmige Kohlenwasserstoffe, führen dementsprechend zu einer Rückwirkung auf die Strom-/Spannungs-Charakteristik.

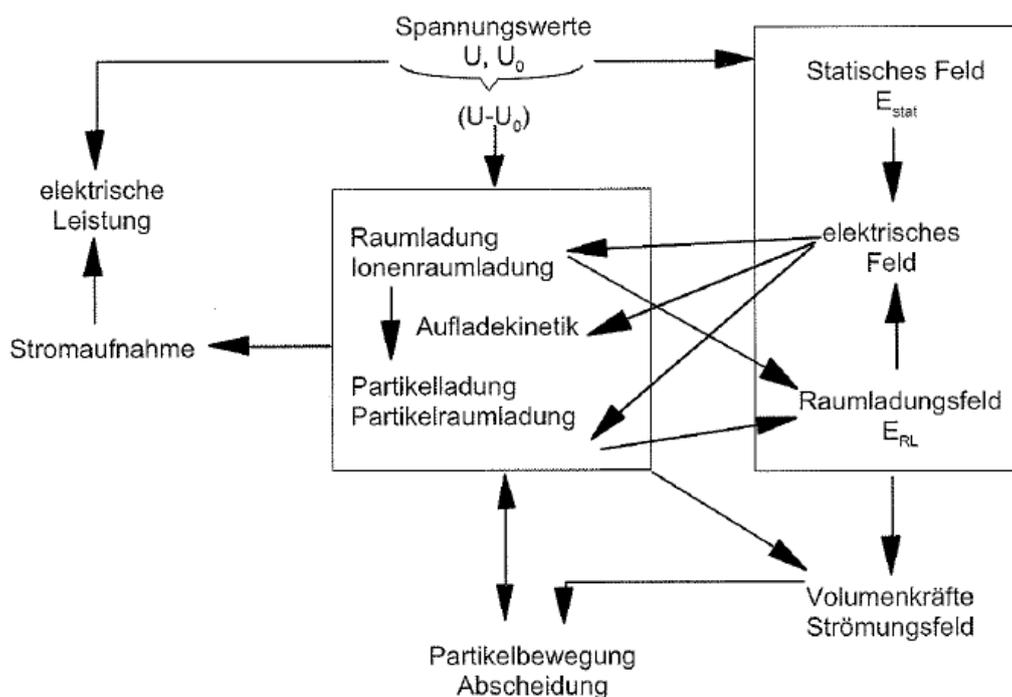


Abbildung 2-8: Die Raumladung als zentrale Größe zur Beschreibung der Vorgänge im Elektrofilter; [6]

In Abbildung 2-9 ist Raumladungsstärke einer Draht-Rohr-Geometrie mit reiner Ionenraumladung, sowie mit überwiegender Partikelraumladung, dargestellt.[6]

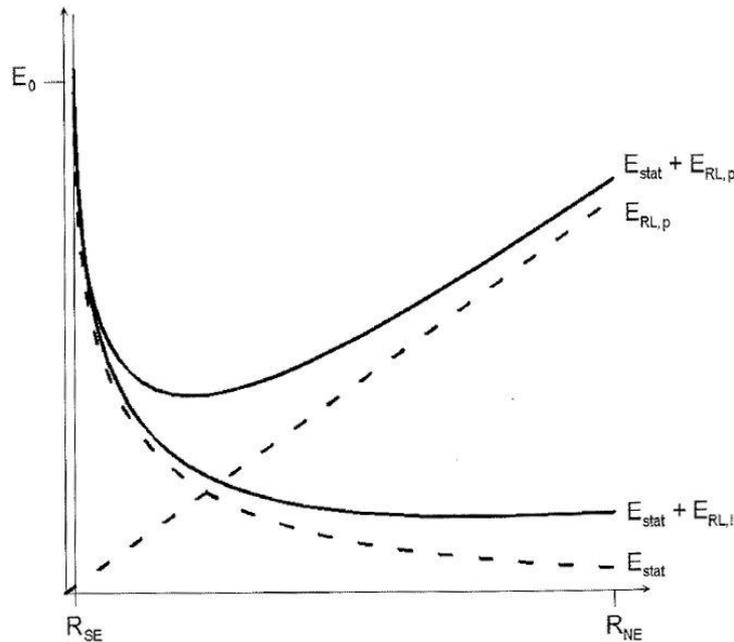


Abbildung 2-9: Radialer Verlauf der elektrischen Feldstärke in einem Rohrelektrofilter;  $E_{stat}$ : statisches Feld der Sprühelektrode,  $E_{RL}$ : Feld der Ionenraumladung,  $E_{RL,p}$ : Feld der Partikelraumladung; [6]

### 2.3 Abscheidung von Aerosolen

Die Abscheidung von Aerosolpartikeln erfolgt nach den selben Mechanismen wie die Abscheidung fester Teilchen. Rohrelektrofilter sind besonders zur Abscheidung von Aerosolen geeignet. Haupteinflussfaktor auf den Abscheidegrad der Aerosolpartikel ist der Teilchendurchmesser. Für die in dieser Arbeit betrachteten Schwefelsäureaerosolpartikel liegt der mittlere Durchmesser in der Größenordnung von 0,15 [ $\mu\text{m}$ ] [3].

Die Kondensation an den Isolatoren bereits durch normale Luftfeuchtigkeit kann zu Problemen bis hin zur Zerstörung der Isolatoren führen. Insbesondere kondensierte Säuren mit ihrer hohen elektrischen Leitfähigkeit führen zu Strömen an der Oberfläche der Isolatoren und folglich zur Zerstörung des Isolators. In der technischen Ausführung wird durch Beheizung der Umgebung des Isolators die Temperatur über den Taupunkt gehoben, wodurch die Kondensation an den Isolatoren verhindert wird. [3; 6]

## 2.4 Auslegungsalgorithmus eines Elektrofilters

Die folgende Beschreibung beschränkt sich auf die Berechnung des Coronastromes. Darüber hinausgehende Berechnungen, insbesondere zur Berechnung der Partikelabscheidung, finden sich in [2], [3], und [5].

Strom und Spannung sind in der Berechnung in elektrostatischen SI-Einheiten einzusetzen, die Umrechnung ist in den Gleichungen 2-4 und 2-5 angeführt.

$$1 [kV] = 1,05 \cdot 10^{-2} \left[ \frac{\sqrt{kg \cdot m}}{s} \right] \quad 2-4$$

$$1 [A] = 9,49 \cdot 10^4 \left[ \frac{\sqrt{kg \cdot m}}{s} \right] \quad 2-5$$

Das Überschreiten der Coroneinsatzfeldstärke ist Voraussetzung für die Ausbildung einer Coronaentladung an der Sprühelektrode. Nach Gleichung 2-6 errechnet sich die Coroneinsatzfeldstärke aus dem Drahtdurchmesser  $r_0$  und den Umgebungsbedingungen.

$$E_0 = A \cdot \delta + B \cdot \sqrt{\frac{\delta}{r_0}} \left[ \frac{kV}{m} \right] \quad 2-6$$

$$\delta = \frac{T_0 \cdot p}{T \cdot p_0} \quad 2-7$$

Die empirischen Parameter A und B wurden von PEEK für die Entladung an einem glatten Draht zu den in Gleichung 2-8 angeführten Konstanten bestimmt [7].

$$E_0 = 3000 \cdot \delta + 90 \cdot \sqrt{\frac{\delta}{r_0}} \left[ \frac{kV}{m} \right] \quad 2-8$$

Die Coroneinsatzspannung eines Rohrelektrofilters errechnet sich nach Gleichung 2-9, wobei  $R/r_0$  das Verhältnis von Rohr- zu Elektrodenradius darstellt.

$$U_0 = E_0 \cdot r_0 \cdot \ln \left( \frac{R}{r_0} \right) [kV] \quad 2-9$$

Die Betriebsspannung liegt im Bereich zwischen der Coroneinsatzspannung und der Durchschlagsspannung  $U_{\max}$ , wobei die Durchschlagsspannung erfahrungsgemäß aus dem Abstand zwischen Sprühelektrode und Niederschlagselektrode nach Gleichung 2-10 abgeschätzt wird.

$$U_{\max} = 6 - 8 [kV/cm] \quad 2-10$$

Der spezifische Coronastrom pro Meter Elektrode kann anhand von unterschiedlichen Beziehungen abgeschätzt werden. In Gleichung 2-11 ist die Theorie kleiner Ströme angeführt, die Theorie mittlerer Ströme (Gleichung 2-12) ist bei mittleren Stromstärken anzuwenden.

$$I = U \cdot (U - U_0) \frac{2 \cdot K}{R^2 \cdot \ln\left(\frac{R}{r_0}\right)} \left[ \frac{mA}{m} \right] \quad 2-11$$

$$I = \frac{2 \cdot K}{R^2} [(U - U_0)^2] + \frac{U_0 \cdot (U - U_0)}{\ln\left(\frac{R}{r_0}\right)} \left[ \frac{mA}{m} \right] \quad 2-12$$

Die Ionenbeweglichkeit  $K$  ist in einer negativen Korona mit  $20 \left[ \sqrt{\frac{m^3}{kg}} \right]$ , und in einer positiven Korona mit  $10 \left[ \sqrt{\frac{m^3}{kg}} \right]$  anzunehmen [3; 2; 7].

## 2.5 Experimentelle Konzepte des Coronareaktors

Die Anwendung einer Coronaentladung zur Oxidation wurde in unterschiedlichsten Konzepten untersucht. Neben kontinuierlich betriebenen Versuchsanlagen existieren verschiedenste Reaktoren, die gepulsten Entladungen nutzen. Insbesondere die Ozonbildung in Coronaentladungen und Elektrofiltern wurde näher untersucht. Der Vorteil des Betriebs mit konstanter Spannung gegenüber dem Pulsbetrieb besteht nach [8] in dem geringeren Energiebedarf der kontinuierlichen Coronaentladung.

Von YANG wurde in [9] ein Versuchsaufbau ähnlich dem in dieser Arbeit untersuchten, bestehend aus einem Rohrreaktor mit nachgeschlagener Blasensäule, zur Oxidation von Stickstoffmonoxid untersucht. Die Strom-/Spannungs-Charakteristik des untersuchten Reaktors ist in Abbildung 2-11 dargestellt, der Konzentrationsverlauf von Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid in Abbildung 2-10.

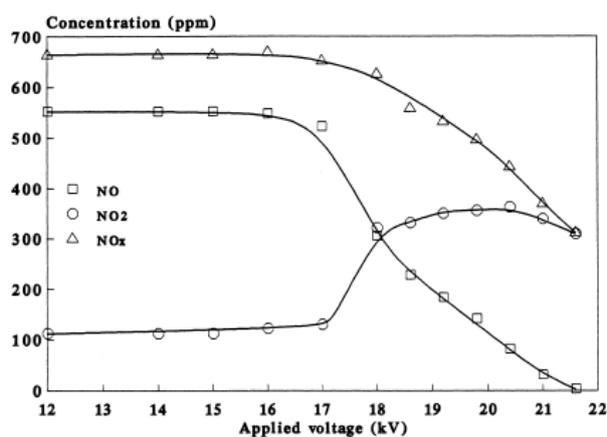


Abbildung 2-10: NO<sub>x</sub> Konzentrationsverlauf des Reaktors mit 51 [mm] Innendurchmesser und 300 [mm] Länge; [9]

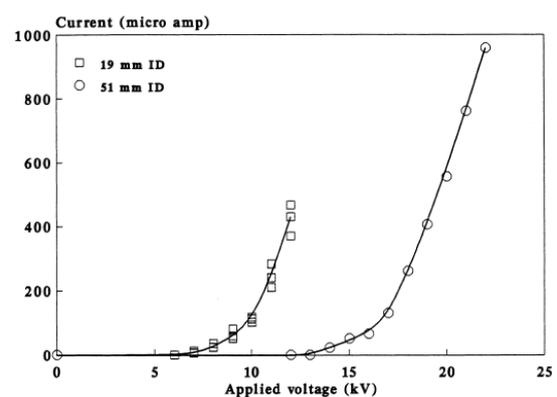


Abbildung 2-11: Strom-Spannungs-Charakteristik der beiden untersuchten Reaktoren, Länge: 300 [mm]; [9]

## 2.6 Absorption

Die Absorption ist ein thermisches Stofftrennverfahren zur Auftrennung von Gasgemischen durch Aufnahme von Gaskomponenten in ein Lösungsmittel, dem sogenannten Absorbens. Die treibenden Kräfte für den Stoffaustausch zwischen Gas- und Flüssigphase werden durch Partialdruckunterschiede beziehungsweise durch Konzentrationsunterschiede erreicht. Es wird unterschieden zwischen der physikalischen Absorption und der Absorption mit chemischer Reaktion. Im Fall der physikalischen Absorption wird die Übergangskomponente rein physikalisch in der Flüssigphase gelöst, wohingegen bei der Chemisorption dem Stoffaustausch eine chemische Reaktion der Übergangsgaskomponente folgt. Abhängig von der Geschwindigkeit der chemischen Reaktion, im Verhältnis zum Stofftransport, werden acht verschiedene Regime, nach der Einteilung von Levenspiel unterschieden. Der Umkehrvorgang der Absorption wird als Desorption bezeichnet. In Abbildung 2-12 ist das Schema einer Absorptionsanlage, bestehend aus Absorber und Lösemittelrückgewinnungsanlage, dargestellt. [10; 11]

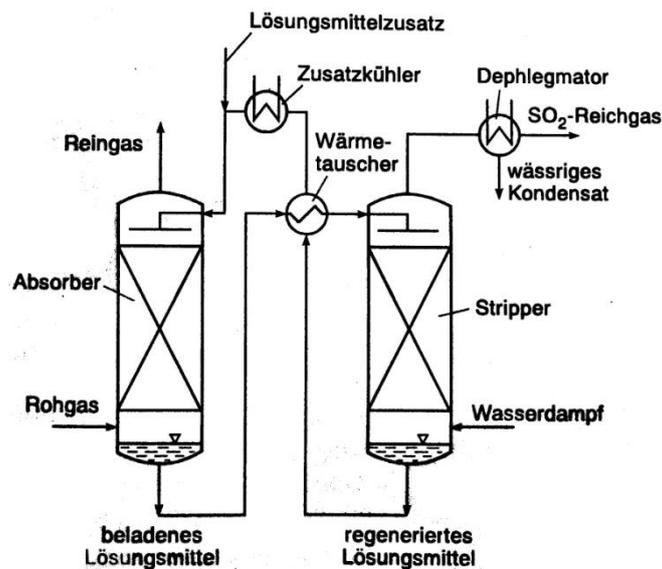


Abbildung 2-12: Verfahrensschema einer Absorptionsanlage mit Lösemittelwiederaufbereitung zur physikalischen Absorption von  $\text{SO}_2$  aus einem Gasstrom mittels organischer Lösungsmittel; [11]

### 2.6.1 Stoffübergang

Der Vorgang des Stofftransports, ohne chemische Reaktion, zwischen zwei Phasen über eine Phasengrenzfläche lässt sich über folgende Teilschritte beschreiben:

- Transport der gasförmigen Komponente A aus dem Inneren der Gasphase an die Phasengrenzfläche

- Übergang der Komponente A von der Gasphase in die Flüssigphase bis sich ein thermodynamisches Gleichgewicht einstellt
- Abtransport der Komponente A von der Phasengrenzfläche in den bulk der Flüssigphase.

Tritt eine chemische Reaktion zwischen der Übergangskomponente A und einer Flüssigkeitskomponente auf, so erweitert sich der Vorgang um die folgenden Schritte

- Chemische Reaktion
- Diffusion der Edukte an den Reaktionsort, Diffusion der Reaktionsprodukte ins Innere der Flüssigphase oder an die Phasengrenzfläche.

Zur Beschreibung des Stofftransports existieren verschiedene Modellvorstellungen, wovon folgend die Zweifilmtheorie kurz beschrieben wird.

### Zweifilmtheorie

Die Zweifilmtheorie geht von thermodynamischem Gleichgewicht an der Phasengrenzfläche aus. Innerhalb der Grenzschichten erfolgt der Stofftransport ausschließlich durch molekulare Diffusion. Die Zusammensetzung außerhalb der Grenzschicht wird als einheitlich angesehen. Die Menge der im Grenzschichtfilm vorhanden Übergangskomponente kann vernachlässigt werden, da die Filme als unendlich dünn betrachtet werden. Damit können stationäre Zustände angenommen werden, und die Filme als hintereinandergeschaltete Stofftransportwiderstände angesehen werden. Die übertragene Stoffmenge ergibt sich aus dem 1. Fick'schen Gesetz (Gleichung 2-13).[12]

$$\dot{n}_i = -D_{ij} \left( \frac{\partial c_i}{\partial x} \right) \quad \mathbf{2-13}$$

Unter der Annahme eines linearen Konzentrationsgradienten ergibt sich die Stoffstromdichte nach Gleichung 2-14.

$$\dot{n}_i = D_{ij} \frac{(c_{i,l}^* - c_i)}{\delta_l} = \beta_l \cdot (c_{i,l}^* - c_i) \quad \mathbf{2-14}$$

Der Stoffübergangskoeffizient der Flüssigphase ist demnach durch  $\beta_l = D_{ij}/\delta_l$  beschrieben. Der gasseitige Stoffübergangskoeffizient ergibt sich analog zu  $\beta_g = D_{ij}/\delta_g$ .

An der Grenzfläche wird angenommen, dass Phasengleichgewicht vorliegt. In Gas-Flüssig-Systemen kann das Gleichgewicht durch das Henry'sche Gesetz für ideales Verhalten nach Gleichung 2-15 beschrieben werden.

$$p_{i,l}^* = H'_{i,j} \cdot c_{i,l}^*$$

2-15

In Abbildung 2-13 ist der Konzentrationsverlauf an der Phasengrenzfläche dargestellt.

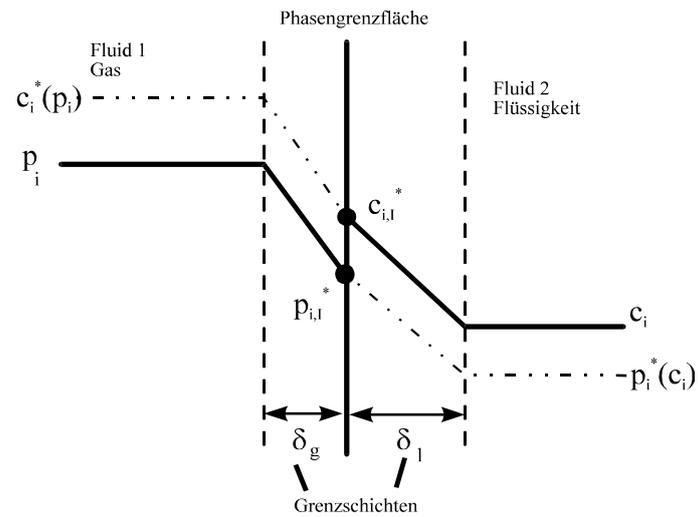


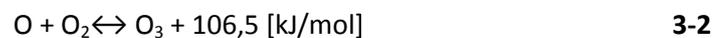
Abbildung 2-13: Konzentrationsverlauf an der Phasengrenzfläche nach der Filmtheorie; [12]

### 3 Stoffsystem und Reaktionsmechanismen

Die Stoffdaten der verwendeten Gase, und der wichtigsten Oxidationsprodukte, sind in Anhang 9.1 angeführt.

#### 3.1 Ozonbildung

Die Ozonbildung aus Sauerstoffmolekülen lässt sich mit dem, in den Reaktionsgleichungen 3-1 bis 3-3, dargestellten Prozess beschreiben. Zur Aufspaltung eines Sauerstoffmoleküls wird eine Energie von 249,3 [kJ/mol] benötigt. Durch frei werdende Energie in der Reaktion des Sauerstoffatoms mit dem Sauerstoffmolekül reduziert sich der Energiebedarf auf 142,8 [kJ/mol].



Die Spaltung der Sauerstoffmoleküle kann durch die Zufuhr thermischer, chemischer, photochemischer oder elektrischer Energie erreicht werden. Die Ozonausbeute ist stark davon abhängig, inwieweit gebildetes Ozon möglichst schnell aus der Reaktionszone entfernt werden kann. Folgereaktionen von Ozon mit Sauerstoffatomen, nach Gleichung 3-4, führen ansonsten zu einem Abbau von Ozon.



Bei der Produktion von Ozon durch die Zufuhr elektrischer Energie, etwa in einem Siemens'schen Ozonisator mit einer stillen Entladung, kommt es in weiteren, folgend angeführten, Zusatzreaktionen zur Ozonbildung.



Ozon ist eine thermodynamisch instabile Verbindung und hat dementsprechend die Neigung unter der Bildung von Sauerstoff nach Gleichung 3-7 zu zerfallen.



Ozon besitzt ein sehr starkes Oxidationspotential, welches in der Nähe atomaren Sauerstoffs liegt.  
[13]

### 3.1.1 Ozonbildung im Elektrofilter

Da eine Ozonbildung im Elektrofilter unerwünscht ist, wird sie nach Möglichkeit minimiert. Insbesondere bei Anwendungen zur Raumlufreinigung, oder wenn Abluft nach der Reinigung wieder recycelt wird, werden Maßnahmen getroffen, um die Ozonbildung zu verhindern. Im Gegensatz dazu stellt die Ozonbildung in dieser Arbeit einen gewünschten Effekt dar, und wird nach Möglichkeit maximiert.

Die Ozonbildung in der Coronaentladung ist abhängig von mehreren konstruktiven Faktoren und Betriebsparametern. Die Ozonbildung ist direkt proportional dem Coronastrom. Der Betrieb mit negativer Spannung gegenüber der Versorgung mit positiver Hochspannung führt zu einer deutlich gesteigerten Ozonbildung in der Coronazone. Die Elektrodengeometrie stellt einen weiteren Haupteinflussfaktor auf die Ozonbildungsrate dar. Weitere Einflussfaktoren auf die Ozonbildung sind die Gaszusammensetzung und die Luftfeuchtigkeit. [14; 2]

### 3.2 Reaktionsmechanismen im Coronareaktor

Die Gasphasenoxidation im Coronareaktor läuft über zwei unterschiedliche Mechanismen ab. Die Reaktion in der aktiven Coronazone im Umkreis um die Sprühelektrode, induziert durch die Coronaentladung, läuft entweder mit molekularem Sauerstoff oder bereits gebildetem Ozon ab, während die Reaktion außerhalb der aktiven Coronazone nur mit gebildetem Ozon erfolgt.

Durch die Coronaentladung erfolgt die Ausstrahlung von UV-Strahlung. Laut SOMMERSACHER beträgt die Strahlungsleistung bei einer Spannung von 18 [kV] und einem Gasdurchsatz von 4,5 [Nm<sup>3</sup>/h] 0,3 [W]. Dies entspricht einem Strahlungsanteil von 5,6 [%] bezogen auf die elektrische Leistung [5]. Der Einfluss der UV-Strahlung auf die Reaktion und Abscheidung, wurde in dieser Arbeit nicht näher spezifiziert.

### 3.3 Reaktion und Absorption von Stickstoffoxiden

Die Reaktion und Absorption von Stickstoffoxiden läuft nach komplexen Mechanismen ab. Ausgehend von Stickstoffmonoxid erfolgt die Oxidation mehrheitlich zu Stickstoffdioxid (NO<sub>2</sub>), sowie in Folgereaktionen zu Distickstofftetroxid (N<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), Distickstofftrioxid (N<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), Distickstoffpentoxid (N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) und zu salpetriger Säure (HNO<sub>2</sub>) und Salpetersäure (HNO<sub>3</sub>).

### 3.3.1 Reaktionsmechanismen von Stickstoffoxiden

Die Gasphasenreaktionen sind in Tabelle 3-1 zusammengefasst. In dieser Arbeit liegt der Schwerpunkt der experimentellen Untersuchung auf der Betrachtung der Reaktion von Stickstoffmonoxid mit Sauerstoff oder Ozon zu Stickstoffdioxid. In Tabelle 3-2 sind die Flüssigphasenreaktionen verschiedener Stickstoffoxide angeführt.

	$\Delta H^0$ [kJ/mol]	$\Delta G^0$ [kJ/mol]
$\text{NO(g)} + 0.5\text{O}_2\text{(g)} \rightarrow \text{NO}_2\text{(g)}$	-57,12	-35,34
$\text{NO(g)} + \text{O}_3\text{(g)} \rightarrow \text{NO}_2\text{(g)} + \text{O}_2\text{(g)}$	-200,29	-198,94
$\text{NO(g)} + \text{NO}_2\text{(g)} \rightarrow \text{N}_2\text{O}_3\text{(g)}$	-40,543	1,625
$\text{NO}_2\text{(g)} \leftrightarrow 0.5\text{N}_2\text{O}_4\text{(g)}$	-28,556	-2,368
$\text{NO}_2\text{(g)} \rightarrow \text{NO}_3\text{(g)} + \text{O}_2\text{(g)}$	-105,06	-98,804
$\text{NO}_2\text{(g)} + \text{NO}_3\text{(g)} \leftrightarrow \text{N}_2\text{O}_5\text{(g)}$	-92,927	-49,308
$\text{NO(g)} + \text{NO}_2\text{(g)} + \text{H}_2\text{O(g)} \leftrightarrow 2\text{HNO}_2\text{(g)}$	-38,459	0,742

Tabelle 3-1: Gasphasenreaktion der Stickstoffoxide bei 25 [°C], [15]

<b>NO<sub>2</sub></b>	<b>N<sub>2</sub>O<sub>4</sub></b>	<b>N<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>
$\text{NO}_2\text{(g)} \rightarrow \text{NO}_2\text{(l)}$	$\text{N}_2\text{O}_4\text{(g)} \rightarrow \text{N}_2\text{O}_4\text{(l)}$	$\text{N}_2\text{O}_3\text{(g)} \rightarrow \text{N}_2\text{O}_3\text{(l)}$
$2\text{NO}_2\text{(l)} + \text{H}_2\text{O(l)} \leftrightarrow \text{HNO}_2\text{(l)} + \text{HNO}_3\text{(l)}$	$\text{N}_2\text{O}_4\text{(l)} + \text{H}_2\text{O(l)} \leftrightarrow \text{HNO}_2\text{(l)} + \text{HNO}_3\text{(l)}$	$\text{N}_2\text{O}_3\text{(l)} + \text{H}_2\text{O(l)} \leftrightarrow \text{HNO}_2\text{(l)}$

Tabelle 3-2: Flüssigphasenreaktion der Stickstoffoxide, [15]

Der Zerfall von salpetriger Säure läuft nach den in Tabelle 3-3 angeführten Mechanismen ab. Die freigesetzten nitrosen Gase desorbieren zum Teil in die Gasphase. Für Salpetersäure existieren daneben verschiedene heterogene Gleichgewichte, ein Auszug ist in Tabelle 3-3 angegeben.

<b>Zerfall salpetriger Säure</b>	<b>Heterogene Gleichgewichte</b>
$3\text{HNO}_2\text{(l)} \leftrightarrow \text{HNO}_3\text{(l)} + 2\text{NO} + \text{H}_2\text{O(l)}$	$3\text{NO}_2\text{(g)} + \text{H}_2\text{O(l)} \leftrightarrow \text{HNO}_3\text{(l)} + \text{NO(g)}$
$2\text{HNO}_2\text{(l)} \leftrightarrow \text{NO(l)} + \text{H}_2\text{O(l)} + \text{NO}_2\text{(l)}$	$3/2\text{N}_2\text{O}_4\text{(g)} + \text{H}_2\text{O(l)} \leftrightarrow 2\text{HNO}_3\text{(l)} + \text{NO(g)}$

Tabelle 3-3: Zerfall von salpetriger Säure und Heterogene Gleichgewichte von, [15]

### 3.3.2 Löslichkeit von Stickstoffoxiden

Die Henry-Konstante für Stickstoffmonoxid in Wasser ist gut beschrieben, da keine Reaktion mit Wasser abläuft. Für höhere Stickstoffoxide, die mit Wasser nach den in Tabelle 3-2 angeführten Reaktionsgleichungen Verbindungen eingehen, existiert kein direktes Messverfahren für die Henry-Konstante. In Tabelle 3-4 sind die Henry-Konstanten verschiedener Stickstoffoxide, ermittelt über Flüssigphasengleichgewichte und Kinetik-Studien, nach einer Zusammenfassung von Schwartz und White angeführt.

	$H_c^{-1}$ [mol/(l·atm)]	$H_x$ [bar]
<b>NO</b>	$1,93 \cdot 10^{-3}$	28400
<b>NO<sub>2</sub></b>	$1,2 \pm 0,4 \cdot 10^{-2}$	$4630 \pm \begin{smallmatrix} 2315 \\ 1160 \end{smallmatrix}$
<b>N<sub>2</sub>O<sub>4</sub></b>	$1,4 \pm 0,7$	$39,7 \pm \begin{smallmatrix} 39,7 \\ 13,5 \end{smallmatrix}$
<b>N<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	$0,6 \pm 0,2$	$92,6 \pm \begin{smallmatrix} 39,7 \\ 23,1 \end{smallmatrix}$

Tabelle 3-4: Henry Konstante von Stickstoffoxiden in Wasser bei 25 [°C], [16]

Ein Vergleich der Henry-Konstanten zeigt, dass Stickstoffmonoxid quasi unlöslich in Wasser ist, und demzufolge eine direkte absorptive Abscheidung nicht möglich ist. Höhere Stickstoffoxide besitzen demgegenüber eine bessere Löslichkeit in Wasser, die im Fall von Stickstoffdioxid jedoch ebenfalls relativ niedrig ist.

### 3.3.3 Absorptionsmechanismen von Stickstoffoxiden

Bei der Absorption von Stickstoffoxiden laufen circa 40 verschiedene chemische Reaktionen ab, und es liegen etwa ebenso viele Gleichgewichte vor [12]. Ein Überblick über die Absorptions- und Reaktionsmechanismen von Stickstoffoxiden ist in Abbildung 3-1 dargestellt.

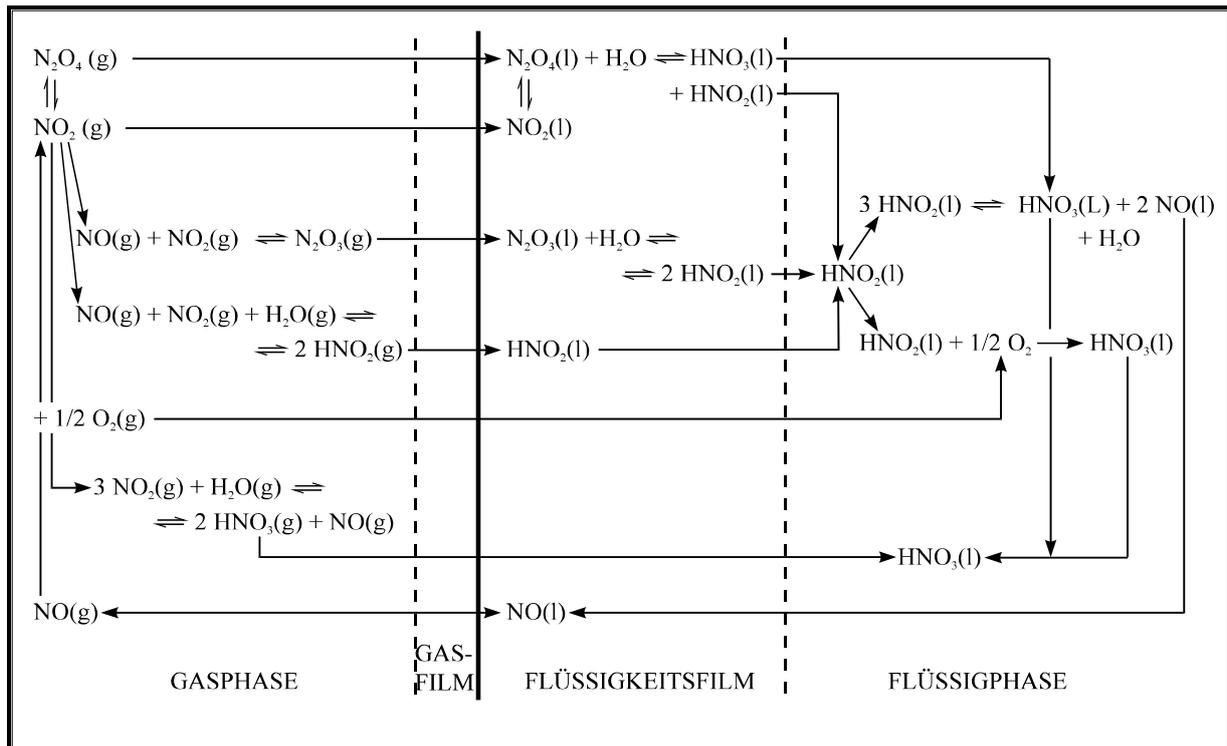


Abbildung 3-1: Absorptionsmechanismus für  $\text{NO}_x$  in Wasser beziehungsweise wässriger Salpetersäure, [17]

Zwischen Stickstoffdioxid und der dimeren Form Distickstofftetroxid besteht ein sich rasch einstellendes Gleichgewicht. Beide Oxide sind in Wasser löslich, der Vergleich der Henry-Konstanten (Tabelle 3-4) zeigt, dass die Henry-Konstante von Distickstofftetroxid um circa den Faktor 100 niedriger ist als jene von Stickstoffdioxid. Demzufolge ist ein möglichst hoher Anteil von Distickstofftetroxid vorteilhaft, um eine hohe Abscheiderate zu erreichen. In Wasser erfolgt die äquimolare Reaktion zu salpetriger Säure und Salpetersäure. Durch den Zerfall der salpetrigen Säure, erfolgt die Desorption des dabei gebildeten Stickstoffmonoxids (Reaktionsgleichung nach Tabelle 3-3).[12]

### 3.4 Reaktionsmechanismus und Absorption von Schwefeldioxid

Schwefeldioxid besitzt im Gegensatz zu Stickstoffmonoxid und den höheren Stickstoffoxiden, eine sehr gute Löslichkeit in Wasser (Henry-Konstante in Gleichung 3-8).

$$H_x = 27,44 \text{ [bar]}, \text{ bei } 25 \text{ [}^\circ\text{C]}$$

3-8

Gelöstestes Schwefeldioxid hydrolysiert abhängig vom pH-Wert der Lösung sofort zu schwefeliger Säure. Ab einem pH-Wert größer 3,9 ist die Schwefeldioxidkonzentration in der Flüssigphase nahezu null, und dementsprechend auch der Gleichgewichtspartialdruck.

Die Gasphasenreaktionen zur Oxidation von Schwefeldioxid zu Schwefeltrioxid sind in Tabelle 3-5 angeführt. Die Reaktionen der in Wasser gelösten Schwefeloxide, beziehungsweise die Reaktion von Schwefeldioxid und Schwefeltrioxid in der Gasphase mit Luftfeuchtigkeit, sind in Tabelle 3-6 zusammengefasst.

	$\Delta H^0$ [kJ/mol]	$\Delta G^0$ [kJ/mol]
$\text{SO}_2(\text{g}) + \text{O}_3(\text{g}) \rightarrow \text{SO}_3(\text{g}) + \text{O}_2(\text{g})$	-242,04	-234,52
$\text{SO}_2(\text{g}) + 0.5\text{O}_2(\text{g}) \rightarrow \text{SO}_3(\text{g})$	-98,952	-70,919

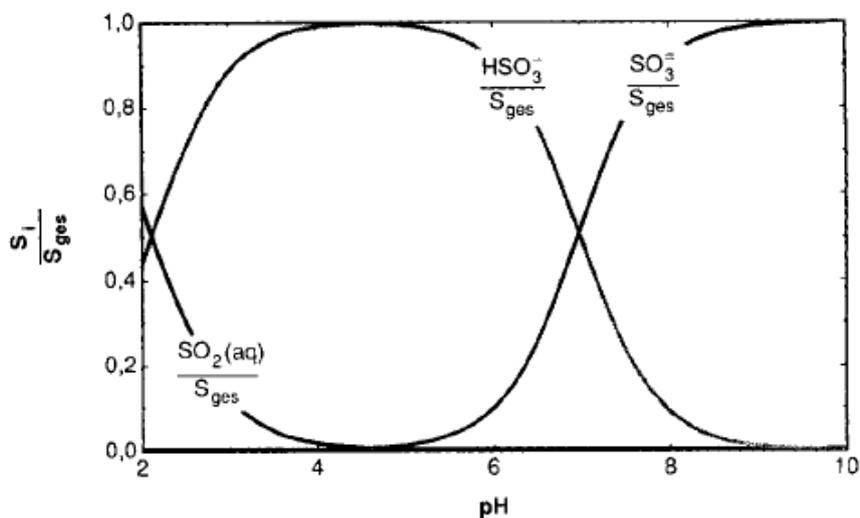
Tabelle 3-5: Gasphasenreaktion von Schwefeldioxid bei 25 [°C]

$\text{SO}_2$	$\text{SO}_3$
$\text{SO}_2(\text{g}) \leftrightarrow \text{SO}_2(\text{aq})$	$\text{SO}_3(\text{g}) + \text{H}_2\text{O}(\text{l}) \leftrightarrow \text{H}_2\text{SO}_4(\text{l})$
$\text{SO}_2(\text{aq}) + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{H}_2\text{SO}_3$	$\text{H}_2\text{SO}_4 \leftrightarrow \text{H}_3\text{O}^+ + \text{HSO}_4^-$
$\text{SO}_2 + 2 \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{H}_3\text{O}^+ + \text{HSO}_3^-$	$\text{HSO}_4^- \leftrightarrow \text{SO}_4^{2-} + \text{H}_3\text{O}^+$
$\text{HSO}_3^- + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{H}_3\text{O}^+ + \text{SO}_3^{2-}$	

Tabelle 3-6: Flüssigphasenreaktionen von Schwefeldioxid und Schwefeltrioxid

Das Dissoziationsgleichgewicht des Systems  $\text{SO}_2/\text{HSO}_3^-/\text{SO}_3^{2-}$ , dargestellt in Abbildung 3-2, zeigt, dass bei niedrigen pH-Werten kleiner zwei der Anteil von gelöstem Schwefeldioxid gegenüber Hydrogensulfit und Sulfit deutlich überwiegt.

In dieser Arbeit wurden Versuche bei pH-Werten kleiner drei, beziehungsweise bei den meisten Versuchen kleiner zwei, durchgeführt.

Abbildung 3-2: Dissoziationsgleichgewicht von  $\text{SO}_2$  in wässriger Lösung in Abhängigkeit vom pH-Wert, [18]

## 4 Versuchsaufbau

Die Versuchsanlage des Coronareaktors, die in dieser Arbeit zur Oxidation und Abscheidung gasförmiger Schadstoffe untersucht wird, ist aus zwei Hauptkomponenten aufgebaut, dem Coronareaktor und dem nachgeschalteten Gaswäscher. Der Coronareaktor wurde von SOMMERSACHER in einer vorangegangenen Diplomarbeit konstruiert. Er wurde für die durchgeführten Experimente adaptiert. Der Gaswäscher, ausgeführt als Packungskolonne, wurde im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebaut. Die Anlage ist in Abbildung 4-1 dargestellt, der schematische Aufbau ist in Abbildung 4-2 ersichtlich.

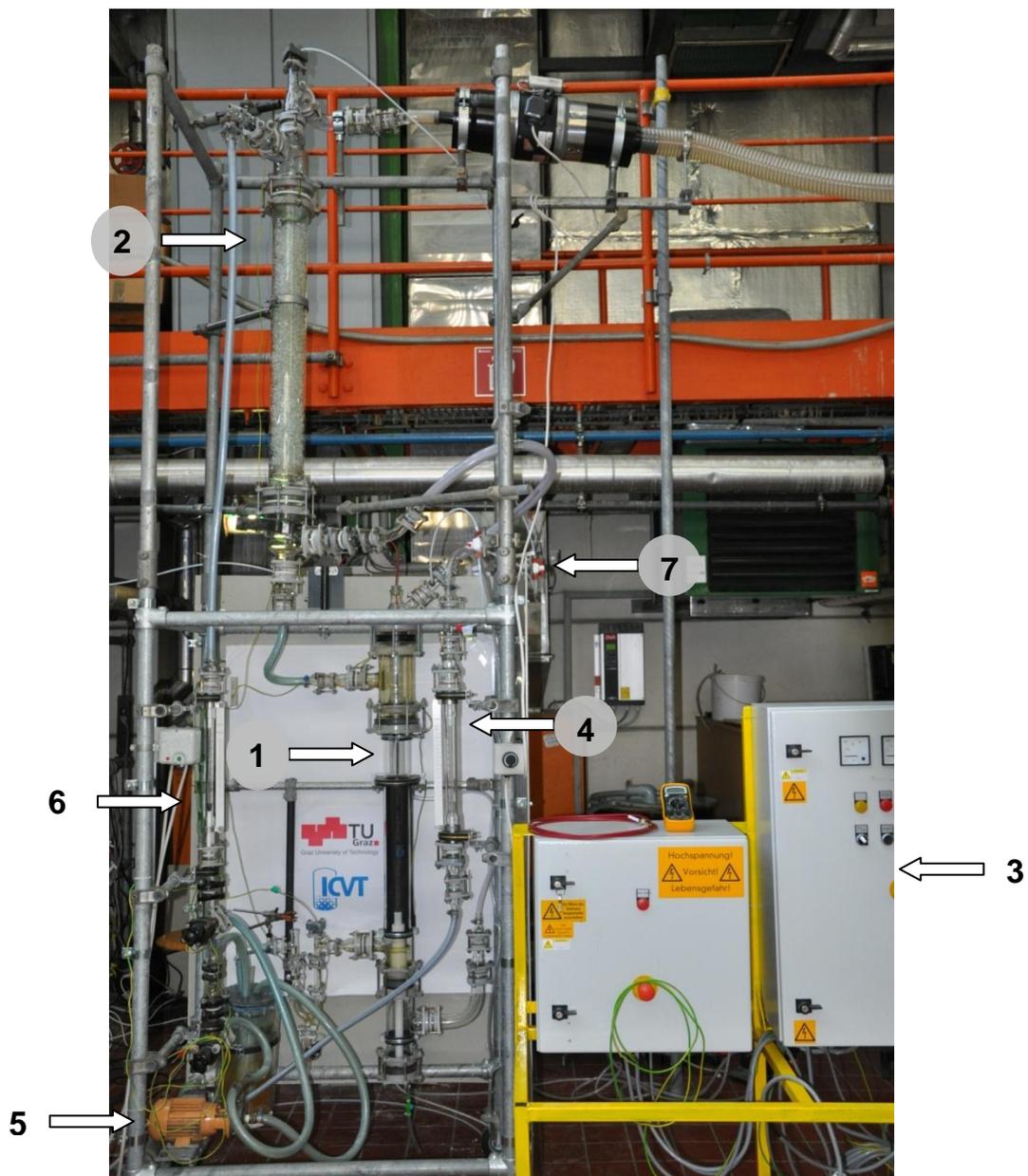


Abbildung 4-1: Gesamtansicht der Versuchsanlage, 1: Coronareaktor, 2: Gaswäscher, 3: Hochspannungsversorgung, 4: Rotameter Gaszuführung FI-02, 5: Pumpe, 6: Rotameter Flüssigseite FI-03, 7: Umschalthähne Messgasleitung

Für die erweiterte Anlage wurde ein gemeinsamer geschlossener Flüssigkeitskreislauf über den Wäscher und den Fallfilm des Reaktors realisiert. Weitere Modifikationen am Coronareaktor betrafen die Gasführung mit den Messstellen für die kontinuierliche Gasanalyse. Die genaue Beschreibung des Gasweges ist in Kapitel 4.3 angeführt, eine Beschreibung des Flüssigkeitskreislaufs folgt in Kapitel 4.4.

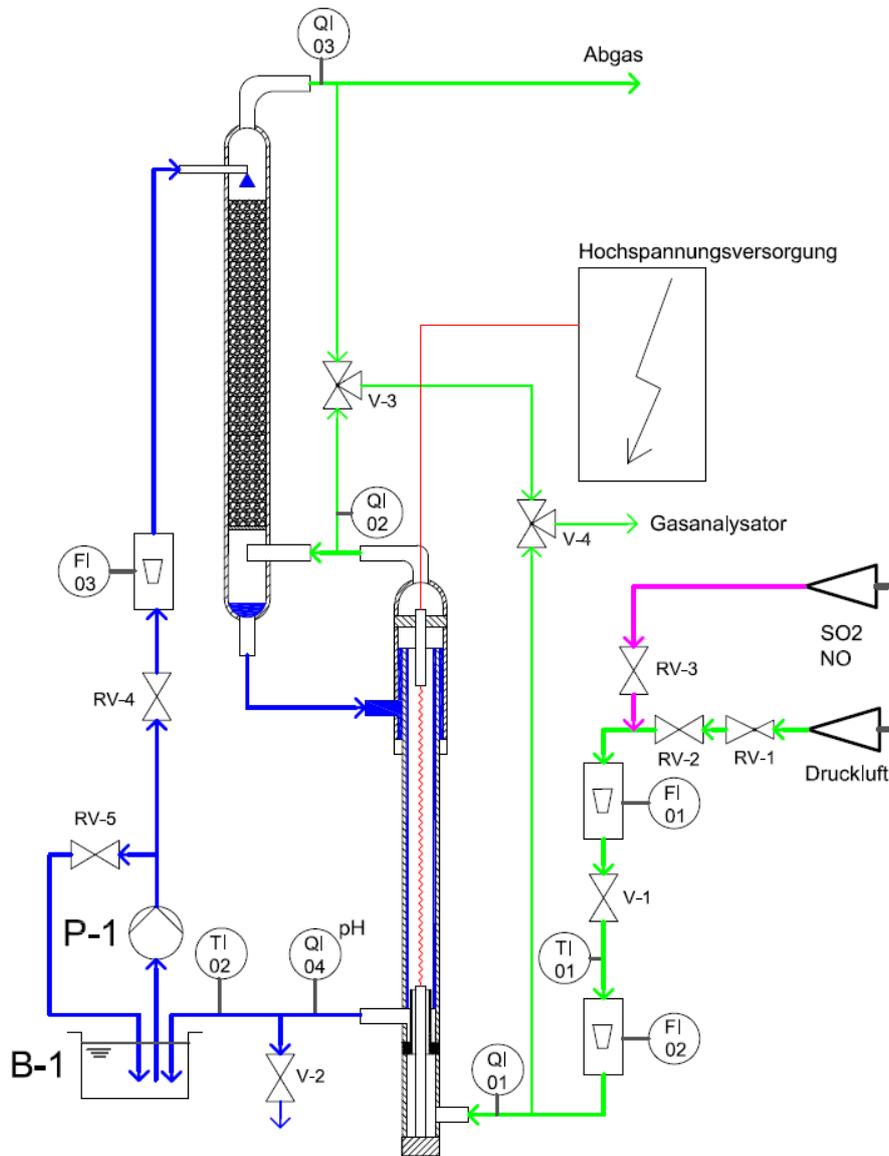


Abbildung 4-2: Schematischer Aufbau der Versuchsanlage

Legende:

- Flüssigkeitsstrom
- Gasstrom
- Schwefeldioxid/Stickstoffmonoxid
- Hochspannungsleitung
- RV Regelventil
- V Absperrventil/3-Wege-Ventil

Im Zuge der Neuanfertigung des unteren Isolators wurde dieser um einen Zentimeter verlängert, um den Abstand zum Flüssigkeitssammler, und dem Flüssigkeitsspiegel im Sumpf, zu erhöhen. Dadurch wurde die gesamte Elektrode um einen Zentimeter nach oben verschoben. Ein ausreichender Abstand zur konstruktiven Ausführung des oberen Isolators ist trotz dieser Änderung gewährleistet. Des Weiteren wurde der untere Isolator teilbar ausgeführt, sodass bei einem elektrischen Durchschlag nur die obere Hälfte getauscht werden muss. Die Originalpläne der Isolatoren sind in [5] angegeben.

Das in Abbildung 4-1 erkennbare Gebläse am Kopf der Kolonne (rechts oben) ist in der aktuellen Konfiguration mit Anschluss an die Abluftanlage der Technikumshalle nicht mehr nötig.

#### **4.1 Charakterisierung des Coronareaktors und der Hochspannungsversorgung**

Der Coronareaktor hat einen Innendurchmesser von 76 [mm] (DN 80) und eine Gesamtlänge von 1,4 [m] zwischen Gaseintritt und Gasaustritt. Mit einer Fallfilmlänge von circa 800 [mm] ergibt sich eine Fallfilmoberfläche von etwa 0,19 [m<sup>2</sup>]. Die Hochspannungsversorgung des Coronareaktors erfolgt mit dem bereits von SOMMERSACHER genutzten Hochspannungs-Versorgungsmodul für Elektrofilter der Firma Wurmitzer. Das Modul ermöglicht die Regelung der Ausgangsspannung im Bereich von 0 bis 24 [kV] in 0,1 [kV] Schritten. Eine nähere Beschreibung des Hochspannungsgenerators findet sich in [5] und [19].

Betrieben wurde die Versuchsanlage im Spannungsbereich von 12-22 [kV], bei Spannungen unter 13 [kV] zeigte sich kein exakt verifizierbarer Stromfluss. Spannungen über 21,5 [kV] führen, abhängig von den weiteren Betriebsbedingungen, zur Ausbildung von Überschlägen und verhindern einen stabilen Dauerbetrieb. Aufgrund der Spannungsregelung im Versorgungsmodell ergeben sich zunehmende Instabilitäten und es kommt zu einem Aufschaukeln des Stromes. Ein kurzfristiger Betrieb ist auch bei Spannungen über 22 [kV] möglich.

Die Fallfilmdicke im Reaktor ergibt sich, nach einer Abschätzung über die Methode von Grassmann, zu 0,27 [mm], siehe dazu Anhang 9.2.

##### **4.1.1 Elektrode**

Die Elektrode ist als Bürstenelektrode mit einem Bürstendurchmesser von acht [mm] und einem Drahtdurchmesser von 0,15 [mm] ausgeführt. Die aktive Elektrodenlänge beträgt 700 [mm], die Gesamtlänge der Elektrode beträgt 790 [mm].

Im Betrieb ist die Elektrode gewissen Alterungseffekten durch die Corona- oder Funkenentladung, die Ozonbildung und die Kondensation von Säuren unterworfen. Dies betrifft in erster Linie den Haltedraht, der aus nicht korrosionsbeständigem Stahl gefertigt ist, und nicht die Elektrodenborsten aus Edelstahl. In Abbildung 4-3 ist ein Vergleich zwischen einer neuen Elektrode, und einer Elektrode nach dem Betrieb unter reiner Luft mit Ozonbildung dargestellt.



Abbildung 4-3: Vergleich einer neuen Elektrode mit einer gealterten, Betriebsstundenanzahl unbekannt

## 4.2 Auslegung des gepackten Gaswäschers

Die Auslegung der Packungskolonnen erfolgte mit dem Algorithmus nach Beck. Da das L/G-Verhältnis durch den gemeinsamen Flüssigkeitskreislauf für Coronareaktor und Wäscher vorgegeben ist, muss der Kolonnendurchmesser dazu passend gewählt werden. Als Füllkörper wurden Raschig-Ringe gewählt.

In der Auslegung wurde besonders der Druckverlust über die Kolonne beachtet. Steigt dieser zu stark an, ist die Summe aus dem Druckverlust über den Coronareaktor und den Wäscher zu groß, um einen Betrieb auch bei höheren Gasdurchsätzen zu gewährleisten.

Aus der in Anhang 9.3 angeführten Berechnung ergeben sich die in Tabelle 4-1 angeführten Spezifikationen.

<b>Durchmesser</b>	DN 100 [mm]
<b>Aktive Höhe</b>	860 [mm]
<b>Füllkörper</b>	Raschig-Ringe, Glas, Durchmesser 15 [mm], Länge 15 [mm]

Tabelle 4-1: Spezifikationen der Füllkörperkolonne

Die Stoffaustauschfläche im Wäscher ergibt sich zu 2,24 [m<sup>2</sup>]. Die Stoffaustauschfläche im Gesamtsystem, unter Berücksichtigung der Fallfilmoberfläche im Reaktor, beträgt damit 2,43 [m<sup>2</sup>].

### 4.3 Gasweg

Als Trägergas kommt Druckluft aus dem Versorgungsnetz der TU Graz zum Einsatz. Die Durchflussrate wird mit dem Regelventil RV-2, und dem nachgeschalteten Rotameter FI-01 direkt bei der Gasaufbereitung eingestellt. Zusätzlich ist in die Anlage des Coronareaktors ein zweites Rotameter (FI-02) eingebaut, wodurch die Kontrolle der Durchflussrate im laufenden Betrieb gewährleistet ist. Das Gas durchströmt den Coronareaktor von unten nach oben, und tritt anschließend in den Gaswäscher ein. Das Gas verlässt die Wäscherkolonne am Kopf und wird in die Abluftanlage des Technikums eingeleitet.

Die Zudosierung der Schadstoffe zum Luftstrom erfolgt über einen BROOKS Mass Flow Controller 5850E (RV-3) mit einem Durchflussbereich von 0-50 [l/h].

In die Gasführung sind drei Messstellen eingebaut. Die Messstelle QI-01 dient zur Messung der Feedkonzentration, QI-02 ist nach dem Coronareaktor angeordnet und QI-03 dient zur Konzentrationsbestimmung nach dem Gaswäscher.

Die Anzeige der Rotameter ist für Luft bei null [°C] und einem Druck von einer [atm] gültig. Die Umrechnung der abgelesenen Durchflusswerte für die eingesetzten Rotameter mit einem Messbereich von 0-17 [Nm<sup>3</sup>/h] auf den tatsächlichen Gasstrom ist in Anhang 9.5 angeführt. In den Diagrammen dieser Arbeit ist der Übersichtlichkeit halber der abgelesene Gasdurchsatz in [Nm<sup>3</sup>/h] angegeben, für die Berechnung von Verweilzeiten oder Umrechnung von Konzentrationen wurde der tatsächliche, berechnete Gasdurchsatz verwendet.

#### 4.3.1 Gaszusammensetzung

Die Zudosierung von Stickstoffmonoxid zum Gasstrom führt zu einer Verschiebung des Stickstoff-Sauerstoff-Verhältnisses im Gas. Stickstoffmonoxid lag als Gasmischung mit fünf Prozent Stickstoffmonoxid in 95 [%] Stickstoff vor. Als Folge daraus ergibt sich ein gewisser Einfluss auf die Strom-Spannungs-Charakteristik, bedingt durch den höheren Stickstoffanteil im Gas. Der sich dadurch einstellende Stickstoffanteil bei Stickstoffmonoxidzufuhr ist in Tabelle 4-2 angeführt.

Schwefeldioxid und Methan lagen jeweils in reiner Form vor, wodurch es zu keiner Veränderung der Gaszusammensetzung kam.

Konzentration Stickstoffmonoxid im Feed [ppm]	Veränderung Stickstoffgehalt des Feedgases [vol%]	Anteil Stickstoff [vol%]
0	0	78,080
10	0,019	78,099
50	0,095	78,175
100	0,190	78,270
200	0,380	78,460

Tabelle 4-2: Stickstoffanteil im Gas bei der Zufuhr der 5 prozentigen Gasmischung von Stickstoffmonoxid

#### 4.4 Flüssigkeitskreislauf

Der geschlossene Flüssigkeitskreislauf des Coronareaktors, beschrieben von SOMMERSACHER in [5], wurde über den Gaswäscher erweitert. Betrieben wird der Flüssigkeitskreislauf mit entionisiertem Wasser, dem zur Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit Salze zugegeben werden. Durch die Ausführung als geschlossener Kreislauf erfolgt mit der Zeit eine Anreicherung von gelösten Gasen, wie Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid, und weiterer Reaktionsprodukte wie Schwefelsäure und Salpetersäure. Diese Veränderung wird durch die kontinuierliche Messung des pH-Wertes (QI-04) überwacht.

Wie aus Abbildung 4-2 hervorgeht, wird die Flüssigkeit aus dem Vorlagebehälter mit einem Flüssigkeitsvolumen von fünf bis sechs Litern mit einer Kreiselpumpe über das Regelventil RV-4 und das Rotameter FI-03 zum Kopf des Wäschers gefördert. Zur zusätzlichen Regelung bei niedrigen Durchflussraten, und um eine bessere Durchmischung im Vorlagebehälter zu ermöglichen, ist ein Bypass (RV-5) nach der Pumpe zurück in den Vorlagebehälter eingebaut. Das Wasser durchströmt den gepackten Wäscher, und tritt anschließend in den Kopf des Coronareaktors ein, wo ein Fallfilm aufgebaut wird. Im Coronareaktor dient der Fallfilm als Erdung der elektrischen Entladung und zur Abscheidung der Reaktionsprodukte. In der Rückflussleitung zum Vorlagebehälter befindet sich der Probenahmehahn V-2, sowie die Messung des pH-Wertes (QI-04) und die Messstelle der Temperatur (TI-02). Die Rückflussleitung wurde als U-Rohr ausgeführt (in Abbildung 4-1 ersichtlich), um ein Durchströmen von Gas zu verhindern.

Die Flüssigkeitsmenge im Kreislauf ist über die Versuchsdauer nicht konstant, sondern verringert sich durch Verluste von Flüssigkeit in die Gasphase, sowie durch die Probenahme aus dem Flüssigkeitskreislauf. Um eine zu starke Verfälschung der Massenbilanz der Flüssigphase zu

verhindern, wurde bei sämtlichen Versuchen die Veränderung des Flüssigkeitsstandes im Vorlagebehälter auf 0,1 [l] genau protokolliert.

#### **4.4.1 Leitfähigkeit der Flüssigphase**

Die Flüssigphase muss elektrisch leitfähig sein, um eine Erdung der Coronaentladung zu ermöglichen. Da die Leitfähigkeit von entionisiertem Wasser nahezu null ist, wurden dem Wasser Salze zugefügt.

Für die ersten Versuche wurde, wie von SOMMERSACHER, Natriumsulfat in einer Konzentration von 40 [g/l] beigemischt. In den Folgeversuchen wurde Natriumsulfat durch Kaliumchlorid ersetzt. Zusätzlich wurde die Konzentration auf 15 [g/l] Kaliumchlorid reduziert, womit sich eine spezifische Leitfähigkeit von circa 3 [S/m] ergibt. Die Leitfähigkeit der Flüssigphase ist während der Versuche nicht konstant, sondern steigt durch die Konzentrationssteigerung von Schwefel- und Salpetersäure an. Die Berechnung der Leitfähigkeit für den Ausgangszustand ist in Anhang 9.4 ausgeführt.

#### **4.5 Messtechnik und Probenahme**

Die Messung der Gaskonzentration von Ozon, Schwefeldioxid, Stickstoffmonoxid und Methan erfolgt an den drei Messstellen QI-01, QI-02 und QI-03. Das Gas wird über einen Messgaskühler und ein Rotameter zur Durchflussregelung zum Gasanalysator gefördert.

Die Temperaturmessung des Gases erfolgt mit dem in die Gasmischstrecke nach dem Rotameter FI-01 eingebauten PT100 Temperaturmessfühler (TI-01).

In der Flüssigphase werden die Temperatur und der pH-Wert kontinuierlich an den Messstellen TI-02 und QI-04 abgelesen. Der pH-Wert sowie die Temperatur werden im Rücklauf des Flüssigkeitskreislaufs vor dem Eintritt in den Vorlagebehälter bestimmt. Zur Konzentrationsbestimmung der gebildeten Schwefelsäure beziehungsweise Salpetersäure werden am Probenahmehahn V-2 während der Versuche nach definierten Zeiträumen Proben abgezogen.

#### 4.5.1 Gasanalysator Limas 11 UV

Die Konzentrationsmessung an Schwefeldioxid und Stickstoffmonoxid erfolgt mit dem Gasanalysator Limas 11 UV, Firma ABB. Die Messung beruht auf dem photometrischen Messprinzip, wobei die Messung in einem Wellenlängenbereich von 200-600 [nm] durchgeführt wird.

Technische Daten	
<b>Hersteller</b>	ABB
<b>Modell</b>	Limas 11 UV
<b>Gemessenes Wellenlängenspektrum</b>	200 – 600 [nm]
<b>Messbereich SO<sub>2</sub></b>	0-4000 [mg/Nm <sup>3</sup> ]
<b>Messbereich NO</b>	0-1000 [ppm]
<b>Messgasdurchsatz</b>	20- 100 [l/h]

Tabelle 4-3: Spezifikationen Gasanalysator Limas 11UV

Die Kalibrierung erfolgt über eine 2-Punkt-Kalibration. Als Nullpunktgas wird Luft, gereinigt über eine Waschflasche, eingesetzt. Die Bestimmung der Endpunkte erfolgte mit den in Tabelle 4-4 angegebenen Prüfgasen.

Kalibriergas	Konzentration
SO <sub>2</sub>	784 [mg/Nm <sup>3</sup> ] in Stickstoff
NO	816 [ppm] in Stickstoff

Tabelle 4-4: Prüfgase zur Kalibrierung des Gasanalysators

#### 4.5.2 Ozonmessung

Die Messung der Ozonkonzentration im Gas erfolgte mit dem Sorbios Ozonmonitor OMH-200, Firma Sorbios, über das photometrische Messprinzip. Anhand der Absorption bei einer Wellenlänge von 254 [nm] wird der Ozongehalt des Gases bestimmt.

Die Kalibrierung des Analysators erfolgt im Betrieb nur anhand eines Nullpunktgases. Dazu wird während der Ozonmessung nach einer definierten Zeitspanne automatisch die Messung unterbrochen und eine Kalibrierung mit ozonfreiem Gas durchgeführt.

Die Konzentrationsmessung findet aufgrund des sehr breiten Gesamtmessbereichs von 0-200 [g/m<sup>3</sup>] am unteren Ende des Messbereichs statt. Die Nutzung eines zweiten Ozonmessgeräts, dem Series-

300 Handheld Ozonmonitor, Firma aeroqual, zur Messung im niedrigen Konzentrationsbereich erwies sich aufgrund des zu geringen Messbereichs als nicht zweckdienlich.

#### **4.5.3 Weitere Messtechnik**

##### *Total Hydrocarbon Analyzer FID3006:*

Die Methankonzentration im Gas wurde mit dem Flammenionisationsdetektor FID3006, Firma Sick Maihak, gemessen. Der Detektor bestimmt den Gesamtgehalt an Kohlenwasserstoffen im Gas. Die Kalibration erfolgt mit technischer Luft als Nullpunktgas und einem Endpunktgas. Als Endpunktgas wurden zwei Prüfgase mit einer Konzentration von 20 [ppm] beziehungsweise 9.800 [ppm] an Propan eingesetzt.

##### *Flüssigkeitsanalyse:*

Zur Konzentrationsbestimmung in der Flüssigphase wurden zwei unterschiedliche Messprinzipien genutzt. Zu Beginn erfolgte die Bestimmung der Konzentration an Sulfat- beziehungsweise Nitrit- und Nitrat-Ionen über die Ionenchromatographie. Daneben wurde die Konzentration über Säure-Basen-Titration bestimmt. Die Auswertung der Gesamtmassenbilanz basierte auf den Analyseergebnissen der Titration. Die Titration wurde mit einer 0,1 molaren Kaliumhydroxidlösung durchgeführt.

##### *Strommessung:*

Zur Quantifizierung des Coronastromes wurde ein in die Erdung des Flüssigkeitsfallfilms zwischengeschaltetes Multimeter, Typ MAS830L, Firma Neuhold Elektronik eingesetzt.

## 5 Experimentelle Untersuchung

In der experimentellen Untersuchung wurde die Oxidation und Abscheidung von Stickstoffmonoxid, Schwefeldioxid und Methan im Coronareaktor untersucht. Mit diesen Gasen sind drei große Gruppen von gasförmigen Schadstoffen, die Stickstoffoxide, die Schwefeloxide und die Kohlenwasserstoffe, abgedeckt. In vorausgehenden Untersuchungen wurde die Ozonbildung und das das Strom-/Spannungs-Verhalten im Betrieb mit reiner Luft bestimmt. In den Hauptversuchen wurde die Oxidation in Abhängigkeit von der Feedkonzentration des betrachteten Schadstoffes, dem Gasdurchsatz und der Spannung, beziehungsweise dem zugehörigen Coronastrom, untersucht.

Basierend auf den Daten der Oxidations- und Abscheideversuche wurde der spezifische Energiebedarf des Coronareaktors berechnet, sowie eine reaktionskinetische Modellierung durchgeführt. Die Modellierungen beziehen sich auf die Konzentrationsänderung über den Coronareaktor allein, während die Abscheidung auf das Gesamtsystem, sowie zum Vergleich auf den Reaktor bezogen ist. Die Strom-/Spannungs-Charakteristiken des Reaktors wurden mit zwei verschiedenen Modellansätzen verglichen. Die Theorie der kleinen Ströme wurde an das Verhalten des Coronareaktors durch eine Erweiterung des Modells und eine Parameteranpassung angenähert.

### 5.1 Generelle Versuchsdurchführung

In diesem Abschnitt ist der Ablauf der Versuchsvorbereitung und der prinzipiellen Versuchsdurchführung kurz zusammengefasst. Der Versuchsablauf gilt für alle durchgeführten Experimente.

Zunächst wurde der Fallfilm im Coronareaktor bei einem Flüssigkeitsdurchsatz zwischen 60 und 70 [l/h] aufgebaut. Der Flüssigkeitsstand im Vorlagebehälter wurde unter Betriebsbedingungen protokolliert und gegebenenfalls vor Versuchsbeginn auf einen Behälterstand von mindestens 1,5 [l] aufgefüllt. Dies entspricht bei einem Flüssigkeitsdurchsatz von 60 [l/h] durch die Anlage einem Flüssigkeitsvolumen im Gesamtkreislauf von 4,6 [l].

Die Gaszufuhr von Druckluft wurde mit dem Regelventil RV-2 auf den erforderlichen Gasdurchsatz eingestellt, und bei den Oxidationsversuchen zusätzlich die Zudosierung des untersuchten gasförmigen Schadstoffs über das Regelventil RV-3 aktiviert. Die Messung der Eingangskonzentration erfolgte an der Messstelle QI-01 vor Eintritt in den Coronareaktor, und vor Inbetriebnahme des Coronareaktors zur Kontrolle an den beiden weiteren Messstellen vor und nach der Wäscherkolonne (QI-02 und QI-03 aus Abbildung 4-2).

Nach Erreichen stabiler Betriebsbedingungen wurde die Hochspannungsversorgung aktiviert. Der Einfluss auf das Oxidationsverhalten wurde im Spannungsbereich von 12 bis 22 [kV] untersucht. Bei hohen Betriebsspannungen über 20,5 [kV] wurde darauf geachtet, dass der Betriebspunkt sich auch als längerfristig stabil erweist, und nicht nach wenigen Minuten in einen instabilen Zustand mit stark schwankendem und ansteigendem Coronastrom abdriftet. Betriebspunkte, die nur kurzfristig stabil waren, wurden in der Auswertung nicht berücksichtigt.

Ein einzelner Betriebspunkt bei konstanter Spannung und relativ konstantem Strom wurde, je nach Versuch, für 15 bis 30 [min] beibehalten. Ein Umschalten zwischen den beiden Gasmessstellen vor und nach dem Gaswäscher mit dazwischenliegender Kontrolle der Feedkonzentration an QI-01 erfolgte alle fünf bis zehn Minuten. Proben aus dem Flüssigkeitskreislauf wurden bei den Oxidationsversuchen von Stickstoffmonoxid und Schwefeldioxid bei Änderung der Betriebsbedingungen abgezogen.

Die Temperatur des eintretenden Gasstromes, die Temperatur im Flüssigkeitskreislauf und der pH-Wert wurden regelmäßig protokolliert. Die Temperatur im Flüssigkeitskreislauf wies stets einen ansteigenden Trend auf. Beginnend bei knapp unter 20 [°C] zu Versuchsbeginn stieg diese auf 24-25 [°C] nach längerem Betrieb an. Die Eintrittstemperatur des Gases lag zwischen 16,5 und 19 [°C].

## 5.2 Untersuchung des Strom-/Spannungs-Verhaltens bei reiner Luft

Die Strom-/Spannungs-Charakteristiken im Betrieb mit Druckluft ohne die Zufuhr der untersuchten Gase dienen als Referenz, um die Beeinflussung des Coronastromes durch die Zufuhr von Schwefeldioxid und Stickstoffmonoxid zu erfassen. Daneben ist ein Vergleich mit den Ergebnissen von SOMMERSACHER und TAHIR möglich. Die Messdaten von SOMMERSACHER konnten in den Versuchen bestätigt werden, zu den Versuchsergebnissen von TAHIR ergab sich, bedingt durch eine andere Geometrie mit 66 [mm] Reaktorinnendurchmesser, ein anderes Verhalten. In Abbildung 5-1 ist ein Vergleich des spezifischen Coronastromes bei drei Gasdurchsätzen dargestellt. Es zeigt sich deutlich, dass mit steigendem Gasdurchsatz die Strom-/Spannungs-Charakteristik steiler wird.

Der spezifische Coronastrom pro Meter Elektrodenlänge ergibt sich aus Gleichung 5-1.

$$I_{\text{spez}} = \frac{I}{L_{\text{Electrode}}} = \frac{I}{0.7} \left[ \frac{\text{mA}}{\text{m}} \right] \quad 5-1$$

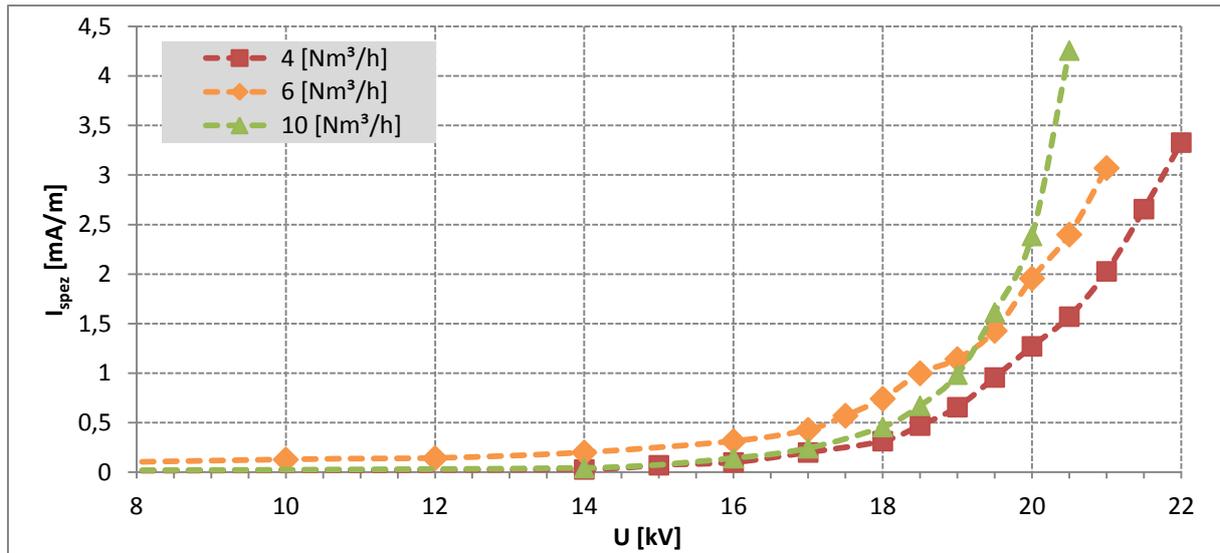


Abbildung 5-1: Strom-/Spannungs-Charakteristik mit reiner Luft

Basierend auf den experimentellen Ergebnissen ist in Kapitel 6.1 die Modellierung der Strom-/Spannungs-Charakteristik angeführt.

### 5.2.1 Untersuchung auf Alterungseffekte der Elektrode

Wie in Kapitel 4.1.1 angeführt ist, ist die Elektrode im Betrieb verschiedenen korrosiven Einflüssen ausgesetzt. Nach dem Einbau der neuen Elektrode wurden die Betriebsstunden protokolliert, und bei einzelnen Betriebspunkten der Coronastrom verglichen. Kontrollmessungen nach etwa 24, 27 und 46 Betriebsstunden des Coronareaktors zeigen keine signifikante Verschiebung in eine bestimmte Richtung. Optisch war eine deutliche Korrosion des Haltedrahtes der Elektrodenborsten erkennbar, die Elektrodenborsten selbst zeigten nur an sehr wenigen, einzelnen, Borsten leichte Abnutzungserscheinungen.

Eine deutliche Beeinflussung des Strom-/Spannungs-Verhaltens konnte durch die Ablagerung von leitfähigen Filmen, insbesondere bei Stickstoffmonoxid- oder Schwefeldioxidzufuhr, auf dem unteren Isolator festgestellt werden. Eine Verfälschung der Ergebnisse wurde durch periodische Reinigung minimiert.

## 5.3 Ozonbildung in der aktiven Coronazone

Die experimentelle Bestimmung der Ozonbildung erfolgte im Betrieb mit reiner Luft, ohne Zudosierung von Schwefeldioxid, Stickstoffmonoxid oder Methan. Da sich durch die Zufuhr dieser

Gase, abhängig von der Konzentration, die Strom-/Spannungs-Charakteristik leicht verändert, ist eine exakte Vorhersage der Ozonkonzentration bei den folgenden Experimenten nur bedingt möglich. Die Versuchsparameter sind in Tabelle 5-1 zusammengefasst.

	Durchflussrate	Temperatur	Konzentration von Zusätzen	Spannungsbereich
<b>Flüssigkeitsstrom</b>	60 [l/h]	19-23 [°C]	40 [g/l] Natriumsulfat	14 – 20,5 [kV]
<b>Gasstrom</b>	1-9,5 [Nm <sup>3</sup> /h]	18,5 [°C]		

Tabelle 5-1: Versuchsparameter der Versuche zur Ozonbildung

In Abbildung 5-2 ist die Ozonkonzentration, in Abhängigkeit von der Spannung, bei verschiedenen Gasdurchsätzen dargestellt. Es zeigt sich, dass bei hohen Spannungen kein allzu großer Unterschied der Ozonkonzentration im Gas feststellbar ist. Im Gegensatz zu TAHIR ergibt sich kein eindeutiges Maximum der Ozonbildung mit einem starken Abfall nach diesem Maximum. Während bei niedrigen Gasgeschwindigkeiten ein Maximum der Ozonbildung im Bereich um 20 [kV] erreicht wird, zeigt sich bei einer höheren Gasgeschwindigkeit noch ein weiterer Anstieg der Ozonbildung mit steigender Spannung.

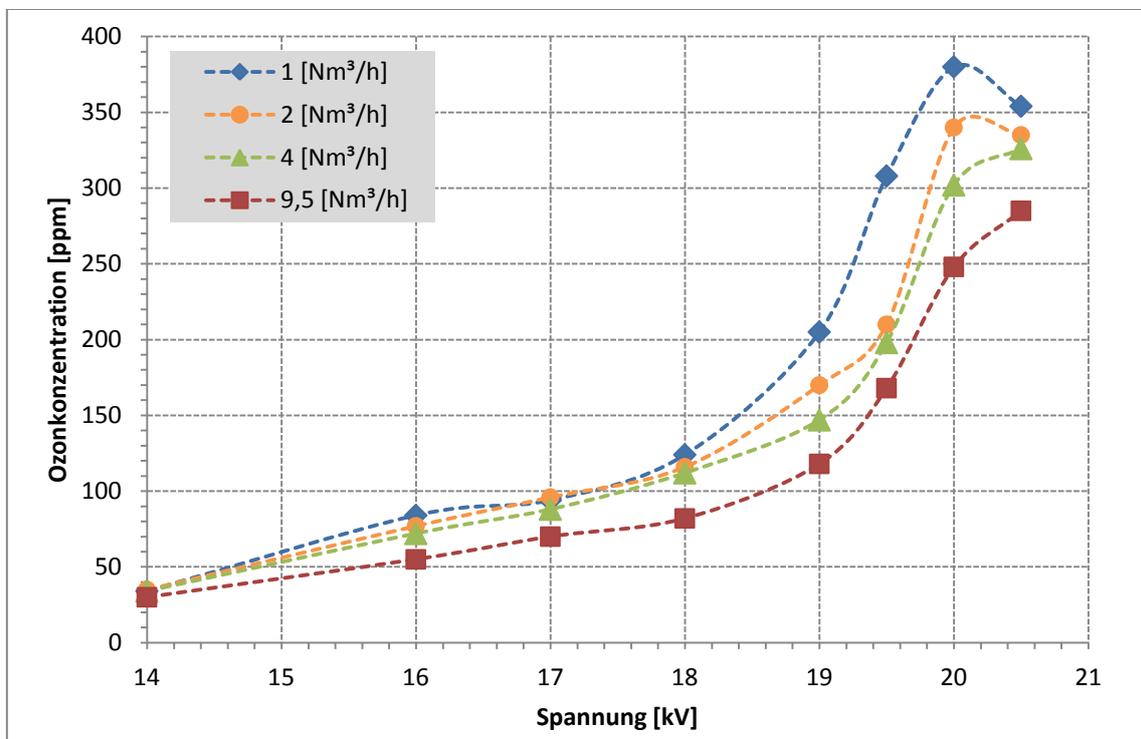


Abbildung 5-2: Ozonkonzentration in Abhängigkeit von der Spannung, Parameter: Gasgeschwindigkeit

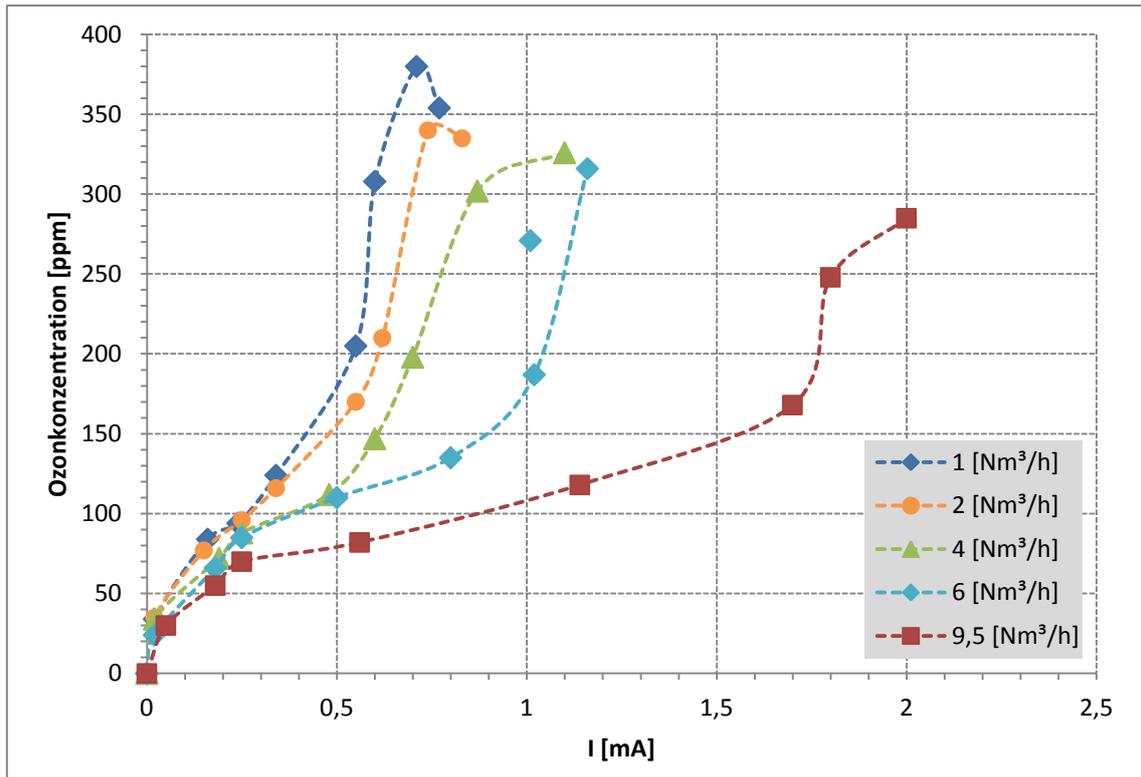


Abbildung 5-3: Ozonkonzentration aufgetragen über dem Coronastrom, Parameter: Gasgeschwindigkeit

Eine Berechnung des spezifischen Energiebedarfs zur Ozonbildung ist in Kapitel 6.2.1 angeführt.

Die Messung der Ozonkonzentration erfolgte ohne den in die Messgasleitung zwischengeschalteten, Messgaskühler, um den Gasweg zu verkürzen und den Druckverlust zu verringern. Die Luftfeuchtigkeit wurde dementsprechend nicht aus dem Gas entfernt. Dies stellt einen nicht exakt bestimmaren Einfluss auf die Messgenauigkeit dar. Ein weiterer Einflussfaktor auf die Genauigkeit ist der, in Kapitel 4.5.2 erwähnte, große Messbereich des Ozonanalysators.

## 5.4 Oxidation und Abscheidung von Stickstoffmonoxid

Stickstoffmonoxid ist, wie in Kapitel 3.3.2 ausgeführt, quasi unlöslich in Wasser. Demzufolge ist die direkte absorptive Abscheidung von Stickstoffmonoxid in einem mit reinem Wasser betriebenen Gaswäscher nicht möglich. Da höhere Stickstoffoxide, wie Stickstoffdioxid oder Distickstofftetroxid, besser in Wasser löslich sind, besteht die Aufgabe darin, einen möglichst hohen Anteil von Stickstoffmonoxid zu höheren Stickstoffoxiden zu oxidieren, und diese Oxidationsprodukte abzuscheiden. Die Abscheidung findet am Fallfilm des Reaktors, und in der nachgeschalteten Packungskolonnen statt. In weiterer Folge kommt es zur Bildung von Salpetersäure und salpetriger Säure durch die Reaktion der Stickstoffoxide mit Wasser und mit gelöstem Ozon. Die auftretenden Reaktionen sind in Kapitel 3.3.1 zusammengefasst. Neben der Reaktion der gelösten Stickstoffoxide in der Waschlösung kann die Reaktion zu Salpetersäure auch in der Gasphase mit der vorhandenen Luftfeuchtigkeit erfolgen. Abbildung 5-4 zeigt die durch gelöstes Stickstoffdioxid verursachte charakteristische Gelbfärbung der Lösung.



Abbildung 5-4: Gelbfärbung der Waschlösung durch gelöstes Stickstoffdioxid

Der Umsatz an Stickstoffmonoxid zu höheren Stickstoffoxiden wurde bei verschiedenen Eingangskonzentrationen und bei verschiedenen Gasdurchsätzen untersucht. Auf eine Variation des Flüssigkeitsvolumsstroms wurde verzichtet, da sich bei den Vorversuchen kein nennenswerter Einfluss dadurch zeigte. Ein Überblick über die durchgeführten Experimente ist in Tabelle 5-2 angegeben, die generelleren Versuchsparameter sind in Tabelle 5-3 angeführt.

		Feedkonzentration an NO [ppm]						
		10	50	100	200	300	400	500
Gasdurchsatz [Nm <sup>3</sup> /h]	1							
	2							
	4							
	6							
	8							
	10							

Tabelle 5-2: Versuchsmatrix

	Durchflussrate	Temperatur	Konzentration von Zusätzen	Spannungsbereich
<b>Flüssigkeitsstrom</b>	60 [l/h]	19-25 [°C]	15 [g/l] Kaliumchlorid	12 – 22 [kV]
<b>Gasstrom</b>	1-10 [Nm <sup>3</sup> /h]	18,5 [°C]	10-500 [ppm] NO	

Tabelle 5-3: Versuchsparameter der Versuche zur Stickstoffoxidabscheidung

#### 5.4.1 Vorversuche

In den Vorversuchen wurde die Querempfindlichkeit der Gasanalysatoren untersucht, und es wurden optimale Feedkonzentrationen für die Versuche bestimmt.

Der Limas 11 UV Gasanalysator zur Messung der Stickstoffmonoxidkonzentration weist keine Beeinflussung der Stickstoffmonoxid-Messung durch im Reaktor gebildetes Ozon auf. Für den Sorbios Ozonmonitor hingegen, zeigt sich eine starke Verfälschung der gemessenen Ozonkonzentration, durch bereits geringe Konzentrationen an beigemengtem Stickstoffmonoxid im Gas. Eine Zufuhr von circa 100 [ppm] zum Gas führt zu angezeigten Ozonkonzentrationen von deutlich über 400 [ppm] im Feedgas. Da unter diesen Bedingungen keine Aussage über den Restozongehalt im Betrieb nach dem Reaktor, beziehungsweise nach dem Wäscher, getroffen werden kann, wurden keine weiteren Ozonmessungen durchgeführt.

Die maximale Stickstoffmonoxidkonzentration im Feedgas ist durch die Durchflussmenge der Brooks Regelventile begrenzt. Die höchstmöglich erreichbare Eingangskonzentration liegt folglich bei etwa 500 [ppm] Stickstoffmonoxid bei einem Gasdurchsatz von einem [Nm<sup>3</sup>/h].

### 5.4.1.1 Stickstoffmonoxidbildung im Coronareaktor

Hohe Betriebsspannungen nahe der Durchschlagsspannung führen im Coronareaktor zu einer Stickstoffmonoxidbildung aus Luftstickstoff und Luftsauerstoff. Die Konzentration an Stickstoffmonoxid steigt, wie Abbildung 5-5 und Abbildung 5-6 zeigen, bei einem niedrigen Gasdurchsatz stärker an. Die Stickstoffmonoxidkonzentration ist bei einem höheren Gasdurchsatz niedriger, die Menge an gebildetem Stickstoffmonoxid pro Stunde liegt dennoch deutlich höher verglichen mit niedrigen Gasdurchsätzen.

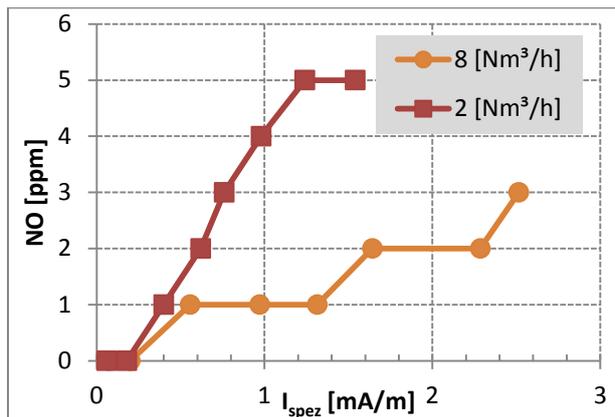


Abbildung 5-5: NO Bildung in Abhängigkeit vom Coronastrom

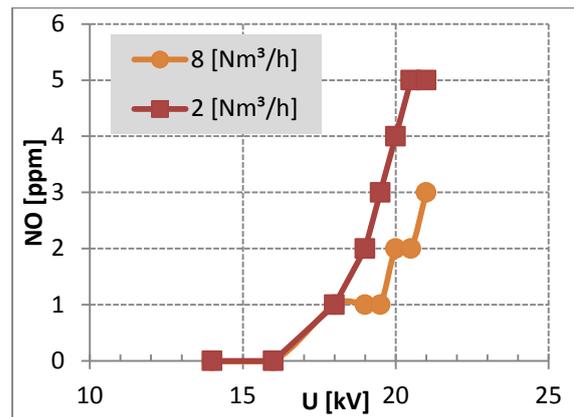


Abbildung 5-6: NO Bildung aufgetragen über der Spannung

Die Stickstoffmonoxidbildung stellt einen wichtigen Einflussfaktor auf die Versuchsreihen mit niedrigen Eingangskonzentrationen an Stickstoffmonoxid dar. Dies trifft auf die Versuche mit zehn [ppm] und 50 [ppm] zu. Bei Konzentrationen über 100 [ppm] stellt die Bildung keinen übermäßig großen Einfluss dar, da der Abbau gegenüber der Bildung deutlich überwiegt. Erst knapp vor der Durchschlagsspannung und bei sehr hohen Umsätzen nahe 100 [%] ist auch bei der Versuchsreihe mit 100 [ppm] eine leichte Verschlechterung der Abscheiderate erkennbar.

Eine exakte Vorhersage des gebildeten Stickstoffmonoxids bei Stickstoffmonoxidzufuhr zum Feedgas ist bedingt durch die Verschiebung der Strom-/Spannungs-Charakteristik nicht exakt möglich.

### 5.4.2 Untersuchung der Oxidation von Stickstoffmonoxid

In den Hauptversuchsreihen wurde die Oxidation basierend auf den Erkenntnissen der Vorversuche untersucht. Im ersten Abschnitt wurde ein Vergleich des Umsatzes an Stickstoffmonoxid bei einer konstanten Eingangskonzentration an Stickstoffmonoxid bei variablen Gasdurchsätzen untersucht,

während im zweiten Abschnitt ein Vergleich des Konzentrationsverlaufs bei einem konstanten Gasdurchsatz mit variabler Feedkonzentration von Stickstoffmonoxid angeführt ist.

#### Vergleich der Oxidation bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen

Abhängig vom Gasdurchsatz wird, wie Abbildung 5-7 zeigt, bei einer Eintrittskonzentration von 200 [ppm] ein sehr hoher Umsatz (berechnet nach Gleichung 5-2) an Stickstoffmonoxid erreicht. Niedrige Gasdurchsätze, und damit längere Verweilzeiten im Reaktor, ermöglichen einen Umsatz an Stickstoffmonoxid von annähernd 100 [%]. Bezogen auf die Gesamtmenge an oxidiertem Stickstoffmonoxid sind höhere Gasgeschwindigkeiten dennoch vorteilhaft, wie in Tabelle 5-4 angegeben.

$$\text{Umsatz NO} = \frac{c_{\text{NO},\text{ein}} - c_{\text{NO},\text{Reaktor aus}}}{c_{\text{NO},\text{ein}}} \cdot 100[\%] \quad 5-2$$

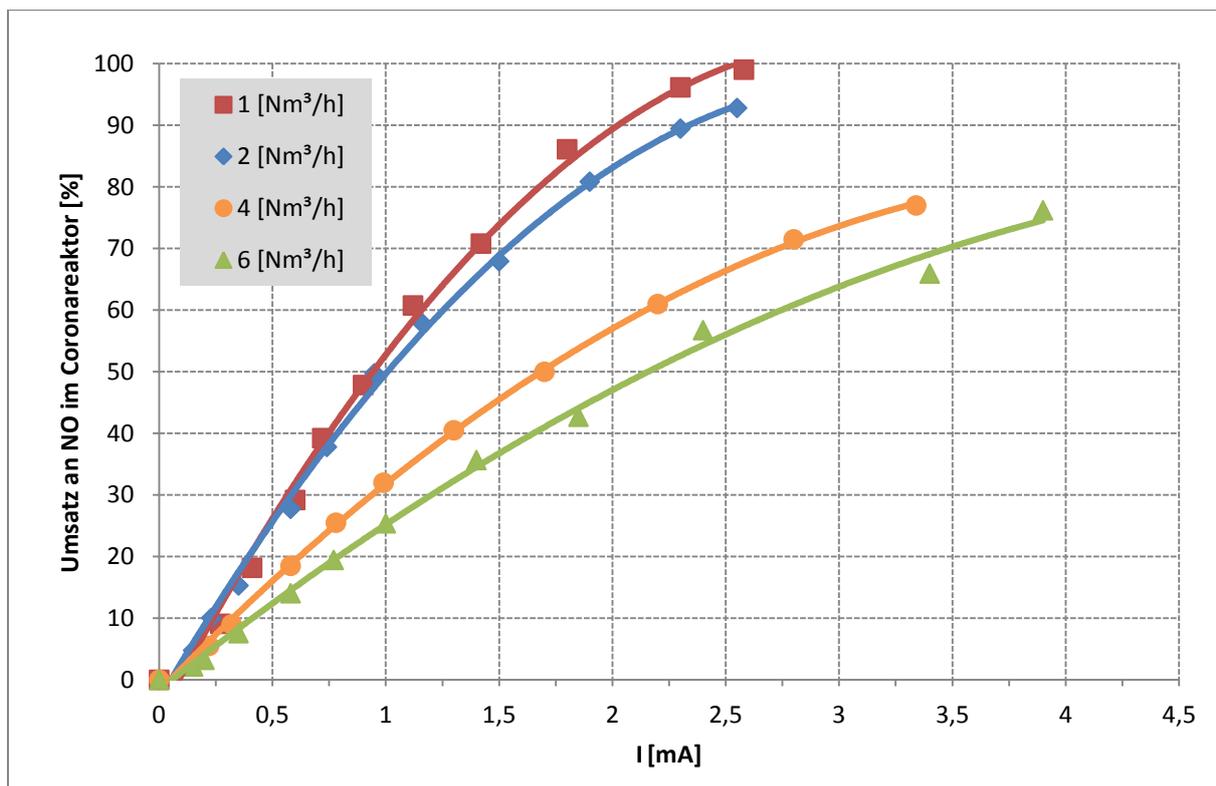


Abbildung 5-7: Umsatz von Stickstoffmonoxid im Coronareaktor über dem Coronastrom bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen, Eingangskonzentration an NO: 200 [ppm]

Gasdurchsatz [Nm <sup>3</sup> /h]	Verweilzeit im Reaktor [s]	Maximaler Umsatz an NO [%]	Menge an oxidiertem NO [g/h]
1	11,1	99,0	0,21
2	5,5	92,8	0,39
4	2,8	77,0	0,62
6	1,9	76,2	0,85

Tabelle 5-4: Umsatz und Menge an oxidiertem Stickstoffmonoxid, bezogen auf den Coronareaktor ohne Wäscher, bei einer Feedkonzentration von 200 [ppm]

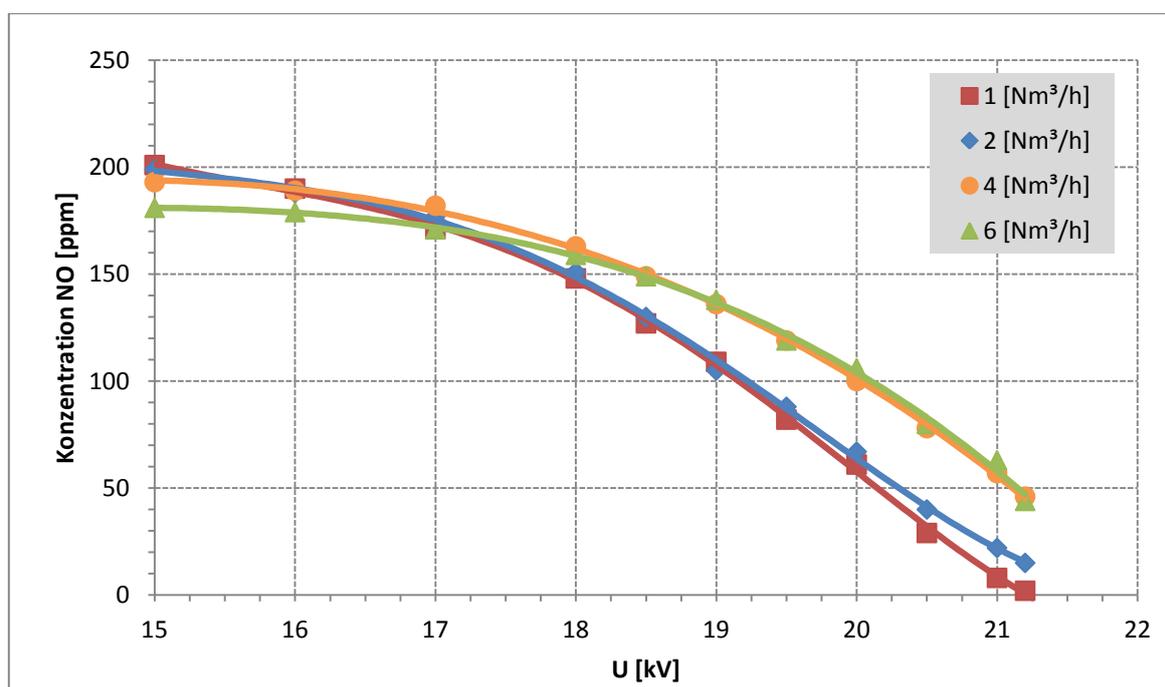


Abbildung 5-8: Konzentrationsverlauf von Stickstoffmonoxid nach dem Reaktor über der Spannung, Eintrittskonzentration: 200 [ppm] NO

Eine halbierte Eingangskonzentration von 100 [ppm] führt zu einem ähnlichen Verhalten (Abbildung 5-9). Der direkte Vergleich zu den Ergebnissen mit 200 [ppm] Stickstoffmonoxid zeigt, dass ein hoher Umsatz bei einem deutlich niedrigeren Coronastrom erreicht wird. Die Abscheideleistung pro Stunde erfährt jedoch eine deutliche Verschlechterung. In Tabelle 5-5 ist ein Vergleich der stündlichen Oxidationsleistung bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen, mit Konzentrationen von 100 und 200 [ppm], angeführt. Der direkte Vergleich bei einem festgelegten Coronastrom von 1,75 [mA] mit extrapolierten Konzentrationen zeigt, dass niedrigere Feedkonzentrationen über den gesamten Betriebsbereich zu einem weniger effizienten Oxidationsverhalten führen.

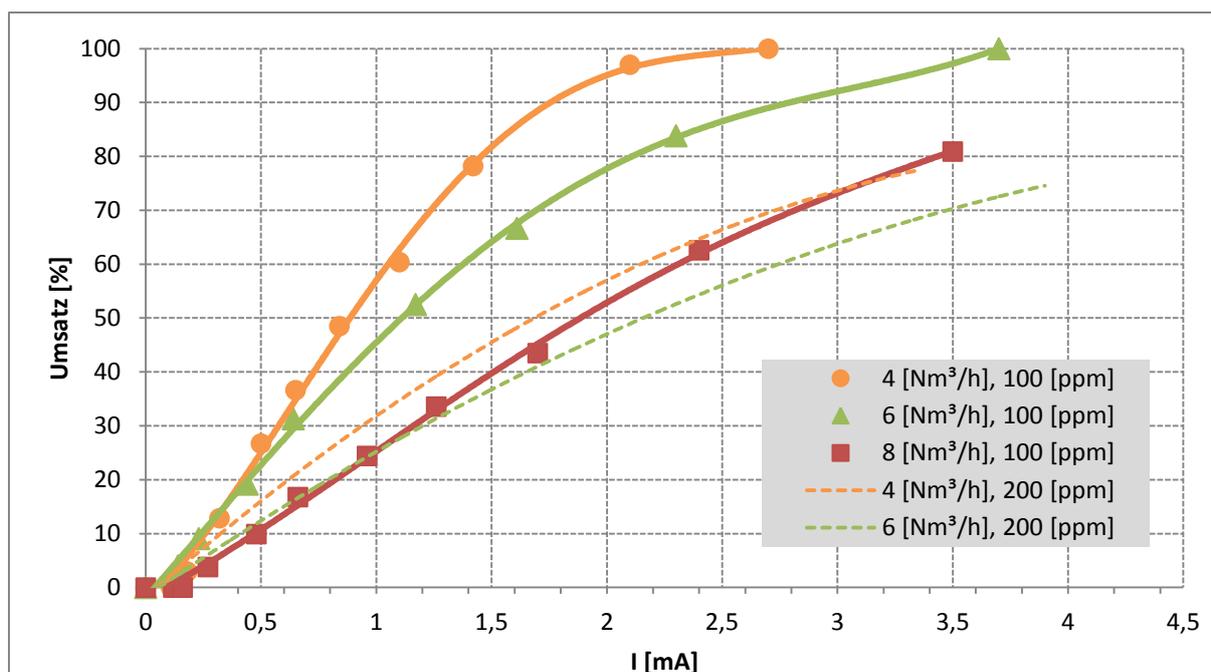


Abbildung 5-9: Umsatz an Stickstoffmonoxid bei einer Eingangskonzentration von 100 [ppm] bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen, bezogen auf den Coronareaktor

Gasdurchsatz [Nm³/h]	NO Feed Konzentration [ppm]	Umsatz bei 1,75 [mA] [%]	Oxidationsleistung bei 1,75 [mA] in [g/h]	Maximale Oxidationsleistung [g/h]
4	101	90	0,50	0,55
4	200	52	0,57	0,85
6	99	72	0,58	0,81
6	185	42	0,64	1,17
8	131	47	0,70	1,20

Tabelle 5-5: Vergleich der Oxidationsleistung bei einem definiertem Coronastrom und der maximal erreichbaren Oxidationsleistung

Sehr niedrige Ozonkonzentrationen führen zu einem hohen Umsatz im Spannungsbereich zwischen 17 und 19 [kV]. Eine weitere Erhöhung der Spannung führt dazu, dass die Bildung von Stickstoffmonoxid den Abbau überwiegt, wie in Abbildung 5-10 dargestellt. Dies trifft auch auf hohe Gasdurchsätze von zehn [Nm³/h] zu.

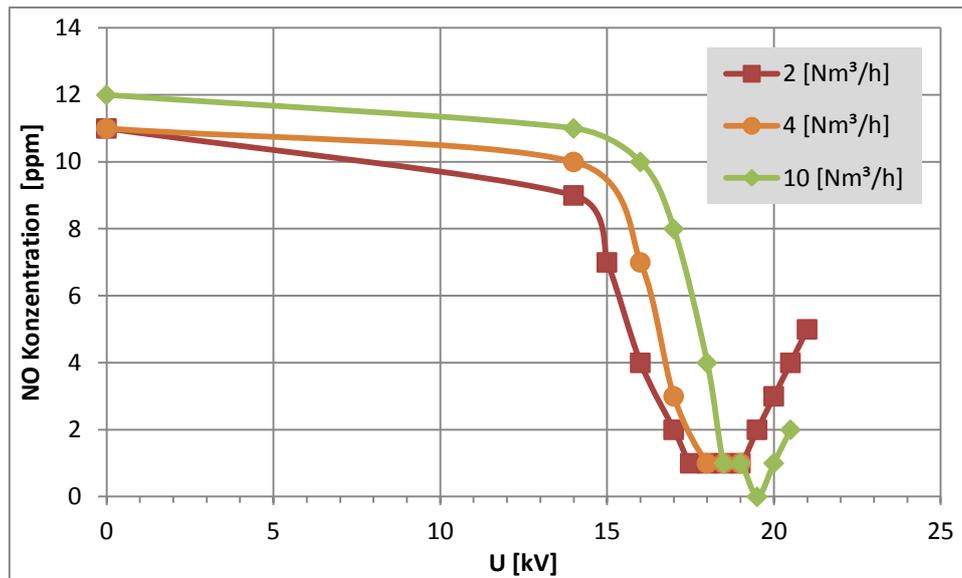


Abbildung 5-10: Konzentrationsverlauf nach dem Coronareaktor bei sehr niedrigen Stickstoffmonoxidkonzentrationen im Gaseintritt bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen

#### Vergleich der Oxidation bei variabler Eingangskonzentration von Stickstoffmonoxid

Der Vergleich des Konzentrationsverlaufs bei einer konstanten Gasgeschwindigkeit mit variablen Eingangskonzentrationen an Stickstoffmonoxid zeigt die selbe Tendenz wie der Vergleich bei variabler Gasgeschwindigkeit. Höhere Eintrittskonzentrationen sind, wie höhere Gasdurchsätze, effizienter bezogen auf die oxidierte Gesamtmenge pro Stunde.

In Abbildung 5-11 ist der Konzentrationsverlauf an Stickstoffmonoxid nach dem Reaktor bei einem konstanten Gasdurchsatz von 2 [Nm<sup>3</sup>/h] in Abhängigkeit vom Coronastrom dargestellt, der Konzentrationsverlauf über der Betriebsspannung folgt in Abbildung 5-12. Der Vergleich zwischen Umsatz und der Menge an abgebautem Stickstoffmonoxid pro Stunde ist in Tabelle 5-6 zusammengefasst.

Der Konzentrationsverlauf zeigt eine deutliche Abflachung bei hohen Coronaströmen, beziehungsweise hohen Spannungen nahe der Durchschlagsspannung. Die Konzentrationsänderung bei konstanter Gasgeschwindigkeit ist bei einer größeren Eintrittskonzentration höher. Während bei einer Eintrittskonzentration von 209 [ppm] ein Umsatz von knapp 90 [%] erreicht wird, werden nur 187 [ppm] oxidiert. Bei einer Eintrittskonzentration von 400 [ppm] ist hingegen ein Abbau von 259 [ppm] erzielbar.

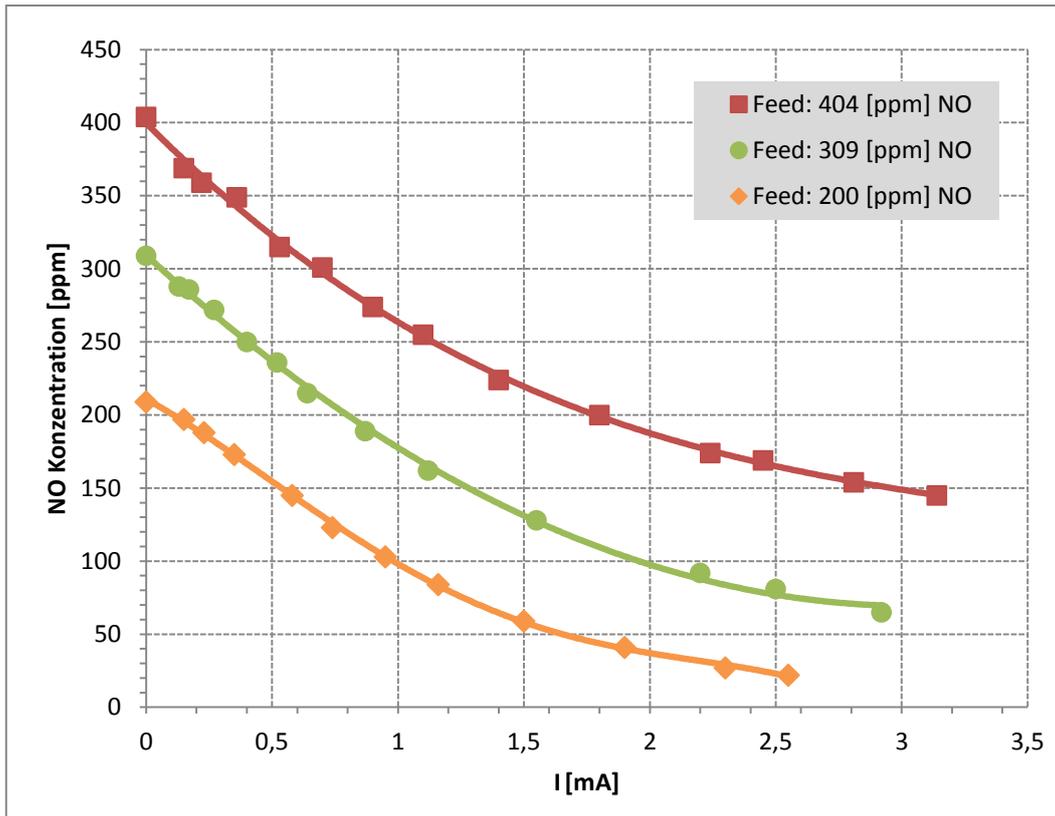


Abbildung 5-11: Konzentrationsverlauf von Stickstoffmonoxid nach dem Coronareaktor bei einem Gasdurchsatz von 2 [Nm<sup>3</sup>/h] mit unterschiedlichen Feedkonzentrationen aufgetragen über dem Coronastrom

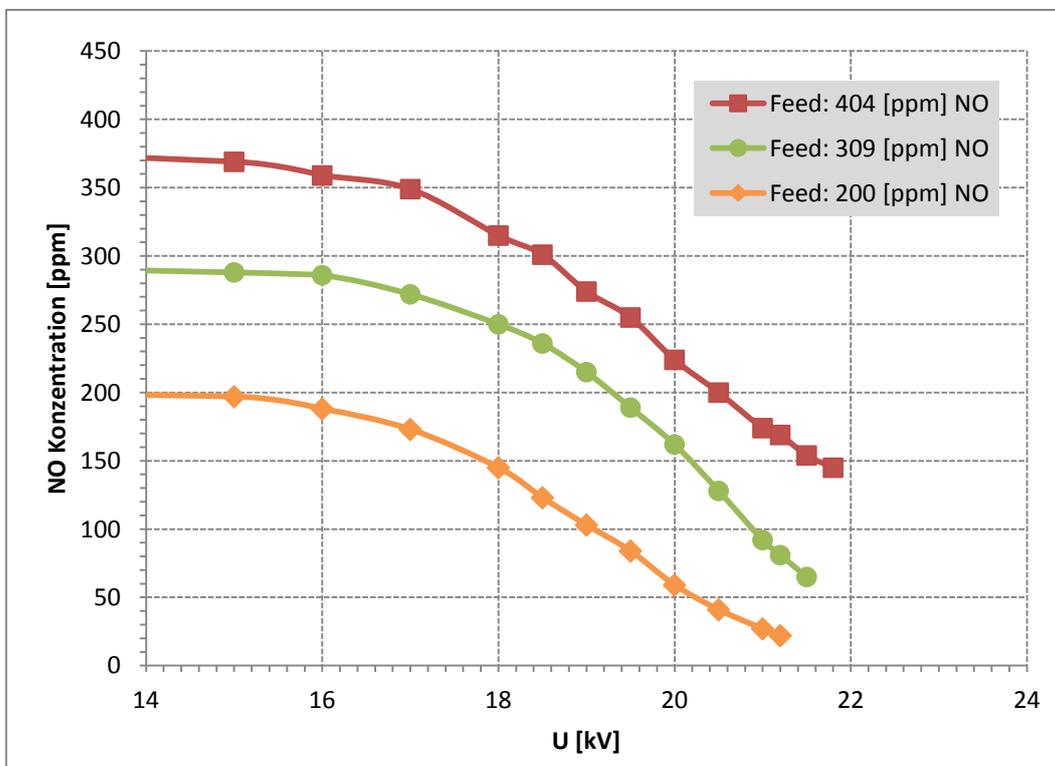


Abbildung 5-12: Konzentrationsverlauf von Stickstoffmonoxid nach dem Coronareaktor bei einem Gasdurchsatz von 2 [Nm<sup>3</sup>/h] mit unterschiedlichen Feedkonzentrationen in Abhängigkeit von der Spannung

Feedkonzentration [ppm]	Umsatz [%]	Menge an abgeschiedenem NO [g/h]
404	64	0,72
309	79	0,67
200	89	0,52

Tabelle 5-6: Umsatz und Menge an abgeschiedenem Stickstoffmonoxid, bezogen auf das Gesamtsystem aus Coronareaktor und Wäscher, bei einem Gasdurchsatz von 2 [Nm<sup>3</sup>/h]

Der Konzentrationsverlauf bei einer sehr niedrigen Gasgeschwindigkeit und einer hohen Konzentration ist in Abbildung 5-13 dargestellt.

In diesem Versuch war ein stabiler Dauerbetrieb bei 21,8 [kV] möglich. Der Konzentrationsverlauf über der Spannung zeigt, dass eine große Konzentrationsänderung durch die Erhöhung der Spannung von 21,5 [kV] auf 21,8 [kV] erreicht wird. Der Vergleich zwischen Abbildung 5-13 und Abbildung 5-14 zeigt, dass der Coronastrom durch die Spannungserhöhung um 300 [V] um fast ein [mA], auf einen spezifischen Coronastrom von 4,8 [mA/m], ansteigt.

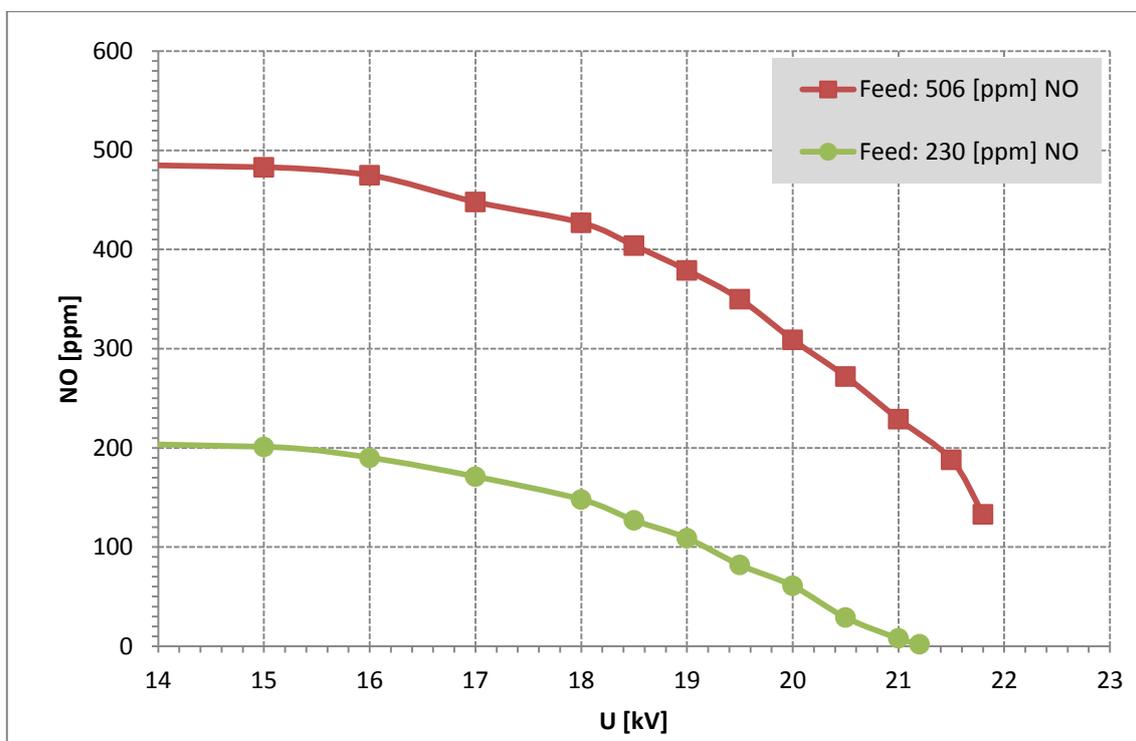


Abbildung 5-13: Konzentrationsverlauf bei einem Gasdurchsatz von 1 [Nm<sup>3</sup>/h] über der Betriebsspannung

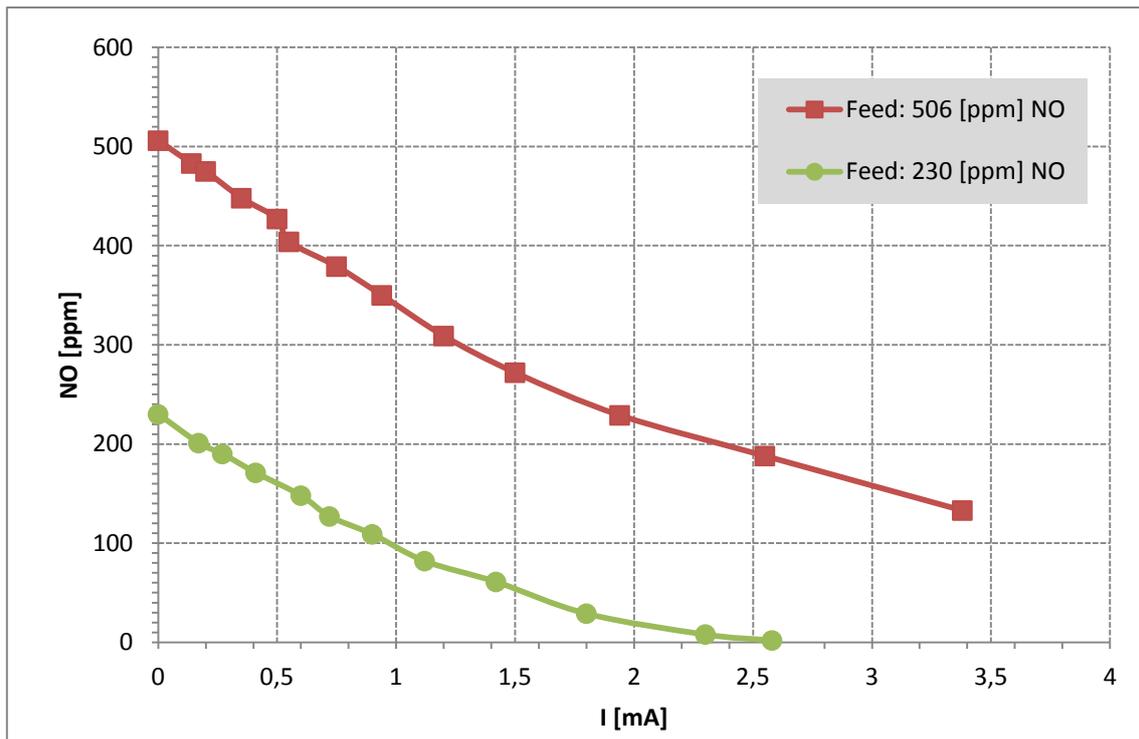


Abbildung 5-14: Konzentrationsverlauf bei einem Gasdurchsatz von 1 [Nm<sup>3</sup>/h] über dem Coronastrom

#### 5.4.2.1 Zusammenfassung der Oxidation von Stickstoffmonoxid

Die Versuche zeigen, dass eine maximale Konzentrationsänderung von circa 370 [ppm] bei einem niedrigen Gasdurchsatz von einem [Nm<sup>3</sup>/h] und der aktiven Elektrodenlänge von 0,7 [m] möglich ist. In Tabelle 5-7 ist die Konzentrationsänderung und die stündliche Abbaumenge von Stickstoffmonoxid bei verschiedenen Betriebspunkten miteinander verglichen.

Hohe Feedkonzentration an Stickstoffmonoxid, und hohe Gasdurchsätze, führen zu den höchsten Abbaumengen pro Stunde. In der untersuchten Konfiguration war bei Gasdurchsätzen über sechs [Nm<sup>3</sup>/h] keine Feedkonzentration von über 200 [ppm] möglich. Daher konnten die Betriebspunkte mit den erwartungsgemäß höchsten stündlichen Abbaumengen an Stickstoffmonoxid nicht untersucht werden.

Gasdurchsatz [Nm <sup>3</sup> /h]	Feed- konzentration [ppm]	U [kV]	I [mA]	$\Delta$ NO [ppm]	Umsatz [%]	Abbau [g/h]
6	185	21,2	3,9	141	76	1,17
4	200	21,2	3,34	154	77	0,85
2	209	21,2	2,55	194	93	0,54
1	209	21,2	2,58	207	99	0,28
1	506	21,8	3,38	373	74	0,50
6	100	20,5	3,7	98	98	0,81
4	100	21	2,7	99	99	0,54
2	404	21,8	3,14	266	66	0,73
2	309	21,5	2,92	252	82	0,70
10	50	20,5	2,85	48	96	0,66
8	131	21	3,5	109	83	1,20

Tabelle 5-7: Zusammenfassung der Oxidationsrate an Stickstoffmonoxid

Eine nähere Diskussion dieser Thematik bezüglich des spezifischen Energiebedarfs ist in Kapitel 6.2.2 angeführt.

### 5.4.3 Einfluss des Gaswäschers auf die Oxidation von Stickstoffmonoxid

Ein Vergleich der Stickstoffmonoxid-Konzentration vor und nach der Wäscherkolonne zeigt, dass durch den Gaswäscher keine Verbesserung der Abscheiderate von Stickstoffmonoxid erreicht wird. In Abbildung 5-15 ist ein Vergleich der Abscheiderate bei vier unterschiedlichen Gasdurchsätzen und einer Feedkonzentration von 50 [ppm] an Stickstoffmonoxid dargestellt. Der Unterschied in der Konzentration von Stickstoffmonoxid ist minimal, in Teilbereichen zeigt sich eine Verschlechterung durch den Gaswäscher. Die zum Teil höhere Stickstoffmonoxidkonzentration nach dem Wäscher kann durch Desorptionseffekte von Stickstoffmonoxid erklärt werden. Durch den Zerfall von salpetriger Säure entsteht Stickstoffmonoxid, welches aufgrund der schlechten Löslichkeit in die Gasphase desorbiert (siehe Zerfallsreaktion in Tabelle 3-3 auf Seite 16).

Die Versuchsreihen mit einem Gasdurchsatz von zwei und sechs [Nm<sup>3</sup>/h] zeigen, dass bei der niedrigen Feedkonzentration von 50 [ppm] an Stickstoffmonoxid die Abscheiderate ab einem gewissen Coronastrom sinkt. Dies ist dadurch bedingt, dass die zuvor angeführte Bildung an Stickstoffmonoxid die Abbaurate überwiegt.

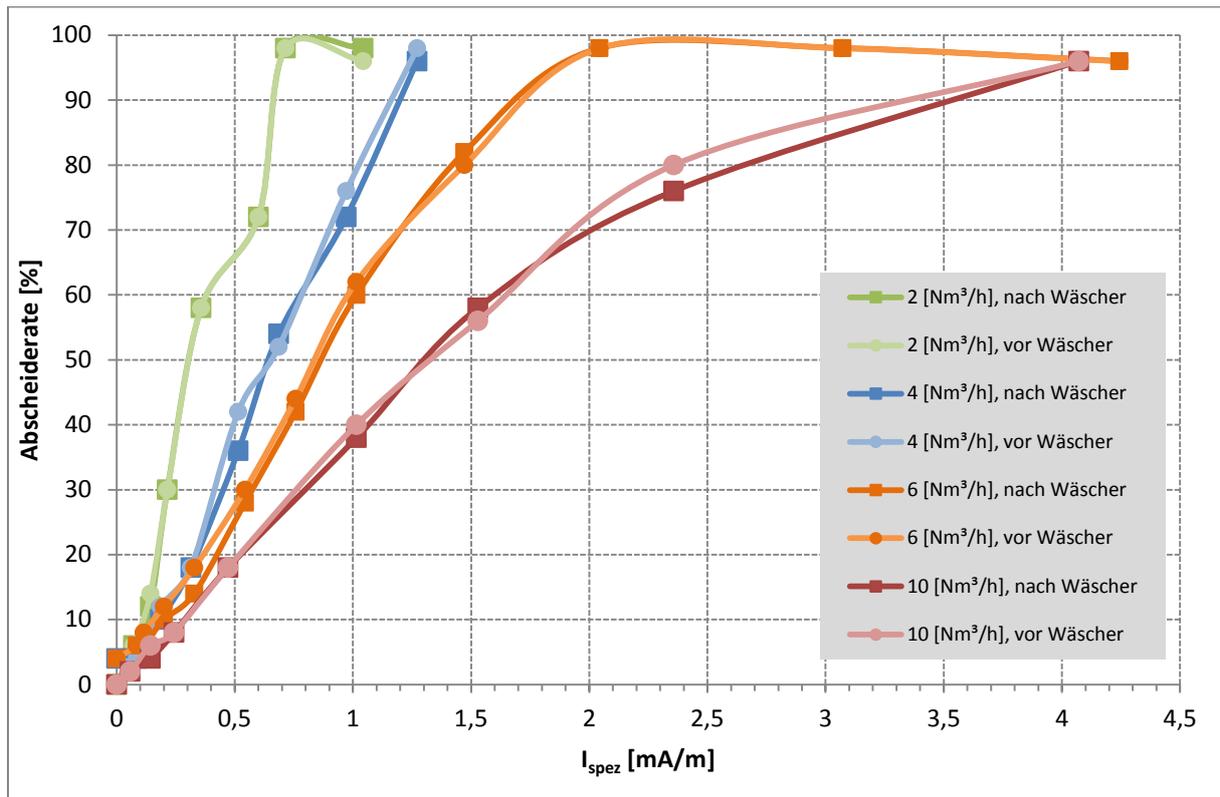


Abbildung 5-15: Vergleich der NO-Konzentration vor und nach dem Gaswäscher bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen über dem spezifischen Coronastrom, Feedkonzentration: 50 [ppm] NO

Für die Abscheidung der gebildeten Oxidationsprodukte, insbesondere von Stickstoffdioxid, kann keine Aussage über die Effizienz der Wäscherkolonne getroffen werden, da der Stickstoffdioxidanteil im Gas messtechnisch nicht erfassbar war. Eine Aussage über die absorptive Abscheidung höherer Stickstoffoxide ist nur für das Gesamtsystem möglich, wie in Kapitel 5.4.5 ausgeführt. Es wäre jedoch zu erwarten, dass sich der nachgeschaltete Wäscher positiv auf die Absorption von Stickstoffdioxid, und weiterer höherer Stickstoffoxide, auswirkt.

#### 5.4.4 Strom-/Spannungs-Charakteristik bei Stickstoffmonoxidzufuhr

Die Strom-/Spannungs-Charakteristik bei der Zufuhr von Stickstoffmonoxid weist, verglichen mit dem Verhalten beim Betrieb mit reiner Luft, eine signifikante Verschiebung auf. In Abbildung 5-16 ist ein Vergleich des spezifischen Coronastromes bei einer konstanten Strömungsgeschwindigkeit dargestellt. Der Coronastrom steigt gegenüber dem Referenzwert, im Betrieb mit reiner Luft, bei einigen Messpunkten um über 100 [%] an. In einigen Versuchsreihen zeigte sich ein leicht gegenläufiges Verhalten, da der Coronastrom mit steigender Konzentration wieder leicht zurückging. Der Strom lag in allen Fällen aber über dem Referenzfall.

Da das zugeführte Stickstoffmonoxid nicht in reiner Form vorlag, sondern wie in Kapitel 4.3.1 angegeben in Stickstoff gemischt ist, entsteht ein gewisser Einfluss durch den veränderten Stickstoffanteil auf das Strom-/Spannungs-Verhalten des Coronareaktors. Im dargestellten Fall mit 50 [ppm] Stickstoffmonoxid erhöht sich der Stickstoffanteil der Luft von 78,08 [%] auf 78,175 [%], bei 200 [ppm] auf 78,46 [%].

Die Modellierung der Strom-/Spannungs-Charakteristik und ein Vergleich mit der Theorie der kleinen Ströme ist in Kapitel 6.1 angeführt.

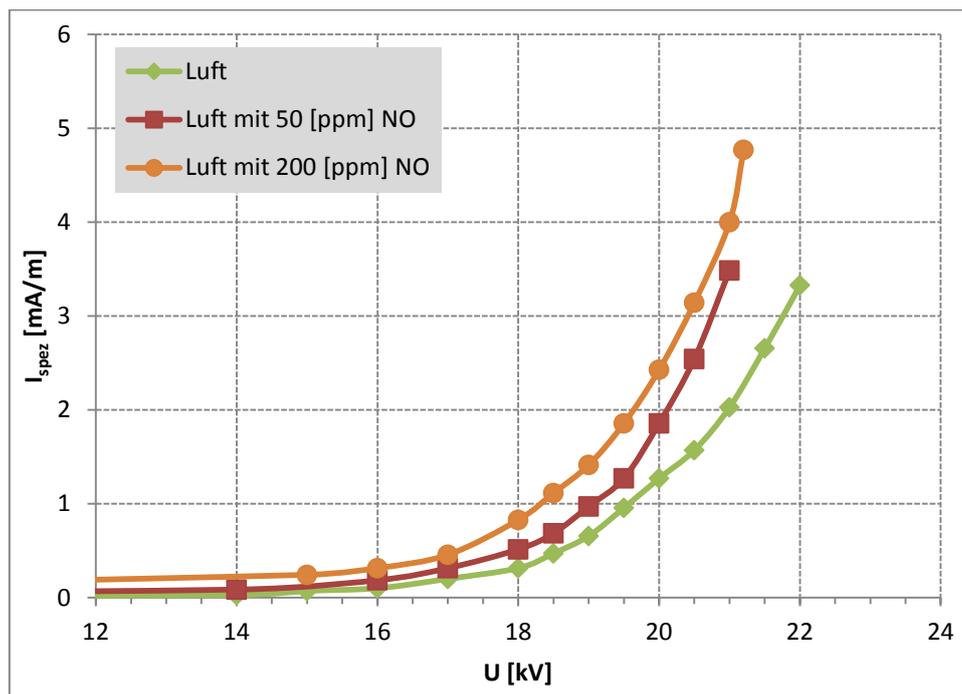


Abbildung 5-16: Einfluss, Gasdurchsatz von 4 [Nm<sup>3</sup>/h]

#### 5.4.5 Salpetersäurekonzentration und Massenbilanz über das Gesamtsystem

Im geschlossenen Flüssigkeitskreislauf erfolgt eine Anreicherung von Salpetersäure und gelöstem Stickstoffdioxid. Der pH-Wert der Flüssigphase ist dementsprechend während der Versuchsdurchführung nicht konstant, wie Abbildung 5-17 exemplarisch zeigt. Ein Einfluss auf die Oxidationsrate von Stickstoffmonoxid durch das Absinken des pH-Wertes besteht nicht, wie durch die Kontrolle einzelner Betriebspunkte festgestellt wurde. Inwieweit sich ein sinkender pH-Wert auf die Abscheidung von Stickstoffdioxid auswirkt konnte aufgrund der Schwankungsbreite der Flüssigkeitsproben nicht exakt validiert werden.

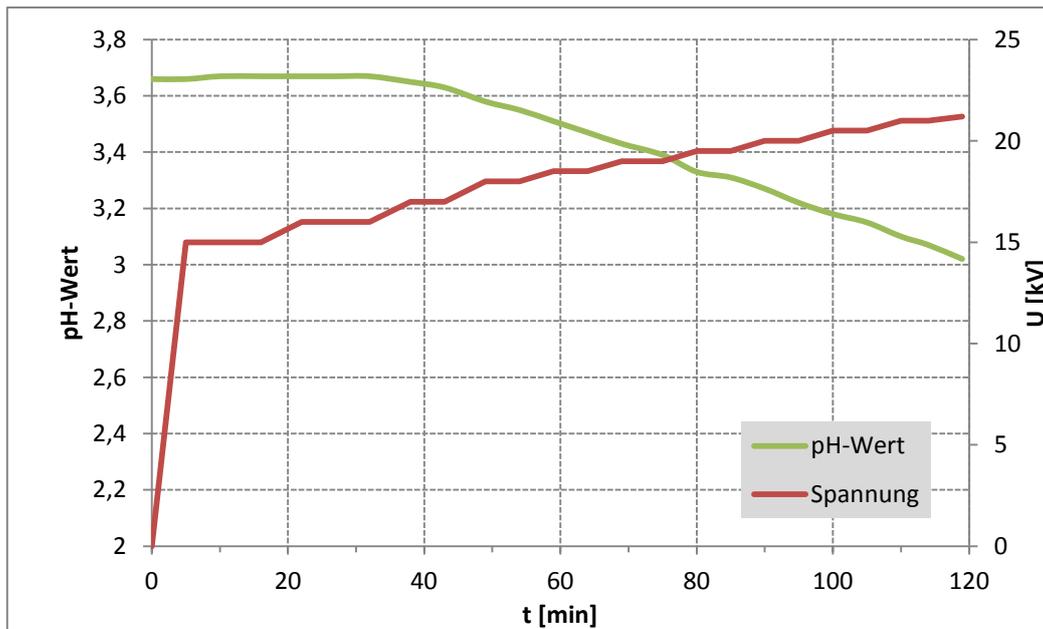


Abbildung 5-17: Verlauf des pH-Wertes während eines Experiments, Gasdurchsatz: 4 [Nm<sup>3</sup>/h], NO: 200 [ppm]

### Massenbilanz

Der Vergleich zwischen der in einer festgelegten Zeitspanne zugeführten Menge an Stickstoffmonoxid, und der ansteigenden Konzentration an Salpetersäure im Flüssigkeitskreislauf, ermöglicht eine Aussage über die Abscheidung von Stickstoffdioxid und der weiteren höheren Stickstoffoxide. Eine direkte messtechnische Erfassung der Stickstoffdioxidkonzentration in der Gasphase war nicht möglich. Die zugeführte Menge an Stickstoffmonoxid ergibt sich aus dem Gasdurchsatz und der Konzentrationsänderung über die Anlage.

Die Säurekonzentration in der Flüssigphase wurde mittels Säure-Basen-Titration bestimmt. Mit der gemessenen Salpetersäurekonzentration kann der Massenanteil an Stickstoffverbindungen im Gesamtsystem berechnet werden.

Die Ergebnisse, zusammengefasst in Tabelle 5-8 zeigen, dass nach der Massenbilanz der Flüssigphase nur ein relativ geringer Anteil der gebildeten höheren Stickstoffoxide abgeschiedenen werden kann. Die Abscheiderate liegt in Bereich zwischen drei und 12 [%] des oxidierten Stickstoffmonoxids. Bezogen auf die Gesamtmenge der zugeführten Stickstoffoxide reduziert sich der Abscheidegrad, abhängig von der Feedkonzentration deutlich. Bei dem in Tabelle 5-8 angeführten Umsatz an Stickstoffmonoxid im Reaktor verringert sich die Abscheiderate auf 2,7 bis 9,7 [%] bezogen auf die zugeführten Stickstoffoxide.

Versuchsbedingungen	$\Delta\text{NO}$	Zufuhr NO	Zufuhr Versuchs- zeitraum	Änderung $\text{HNO}_3$ Konzentration	NO Oxidation	Abscheidung Oxidations- produkte	Gesamt- abscheidung
	[ppm]	[mol/h]	[mol]	[mol]	[%]	[%]	[%]
2 [ $\text{Nm}^3/\text{h}$ ], 20,5 [kV], Feed: 209 [ppm] NO	168	0,0154	0,00768	0,00093	80,38	12,09	9,72
4 [ $\text{Nm}^3/\text{h}$ ], 20,5 [kV], Feed: 200 [ppm] NO	130	0,0238	0,0119	0,00069	65,00	5,86	3,82
4 [ $\text{Nm}^3/\text{h}$ ], 20,5 [kV], Feed: 101 [ppm] NO	98	0,0180	0,00899	0,00077	97,03	8,58	8,33
6 [ $\text{Nm}^3/\text{h}$ ], 20 [kV], Feed: 99 [ppm] NO	83	0,0228	0,00949	0,00031	83,84	3,24	2,71

Tabelle 5-8: Gesamtabseidegrad der Stickstoffoxide

Bedingt durch die nicht bekannte Stickstoffdioxidkonzentration im Gas ist eine exakte Bestimmung der Abscheidung von Stickstoffdioxid nicht möglich. Es muss jedoch, wie in [9] und [15] über Messungen bestimmt wurde, davon ausgegangen werden, dass Stickstoffmonoxid mehrheitlich zu Stickstoffdioxid oxidiert wird. Die schlechte Abscheidung der Stickstoffoxide kann durch die geringe Löslichkeit von Stickstoffdioxid in Wasser erklärt werden. Inwieweit höhere Stickoxide mit einem besseren Lösungsverhalten im Coronareaktor gebildet werden wurde nicht erfasst. Bereits Distickstofftetroxid ( $\text{N}_2\text{O}_4$ ), das Dimer von Stickstoffdioxid, besitzt eine um den Faktor 100 geringere Henry-Konstante, und dementsprechend eine viel bessere Löslichkeit als Stickstoffdioxid.

Daneben besteht die Möglichkeit, dass die schlechte Abscheideleistung durch einer Verfälschung der Massenbilanz durch Messungenauigkeiten bei der Titration, Folgereaktionen der gebildeten Säure oder Fehler bei den Probenahmen zu Stande kam. Eine exakte Aussage kann nur durch die messtechnische Erfassung der Stickstoffdioxidkonzentration im Gas getroffen werden.

#### 5.4.6 Zusammenfassung der Versuche zur Stickstoffoxidabscheidung

Die Ergebnisse zeigen, dass die Oxidation von Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid, und zu weiteren höheren Stickstoffoxiden, effizient möglich ist. Die Abscheidung hoher Stickstoffmonoxidkonzentrationen bei höheren Gasgeschwindigkeiten ist vorteilhaft bezüglich der stündlichen Abbauleistung. Der maximale Umsatz an Stickstoffmonoxid mit der Elektrodenlänge von 0,7 [m] ist in Tabelle 5-9 zusammengefasst. Bei einem Gasdurchsatz von acht [ $\text{Nm}^3/\text{h}$ ] und einer Eintrittskonzentration von 131 [ppm] Stickstoffmonoxid wurde eine maximale Oxidationsrate von 1,2 [g/h] erreicht.

		Feedkonzentration an NO [ppm]						
		10	50	100	200	300	400	500
Gasdurchsatz [ $\text{Nm}^3/\text{h}$ ]	1				99			73
	2	91	98		93	81	65	
	4	91	98	99	77			
	6		96	99	44			
	8			83				
	10	100	96					

Tabelle 5-9: Maximaler Umsatz an Stickstoffmonoxid in den einzelnen Versuchsserien

Der Nachteil dieser Anlagenkonfiguration besteht in der schlechten Abscheidung der gebildeten Oxidationsprodukte. Durch den geschlossenen Flüssigkeitskreislauf des Gaswäschers und dem Betrieb mit reinem Wasser, ist nur ein geringer Anteil von Stickstoffdioxid im Wasser löslich. Durch die Bildung von höheren Stickstoffoxiden und die Bildung von Salpetersäure verbessert sich der Abscheidegrad, die Gesamtabcheidung bezogen auf die Eintrittskonzentration bleibt mit maximal 9,7 [%] dennoch im unteren Bereich.

Das von YANG in [9] untersuchte System erzielt bei Verweilzeiten im Coronareaktor zwischen 2,9 und 3,8 [sec] ähnliche Umsätze an Stickstoffmonoxid wie in dieser Arbeit, erreicht in der nachgeschalteten Blasensäule allerdings eine deutlich bessere Abscheidung von Stickstoffdioxid. Durch die Zugabe von Natriumhydroxid und Natriumsulfat zur Waschlösung wurde von YANG eine nahezu vollständige Abscheidung der Stickstoffoxide erreicht, während in dieser Arbeit eine maximale Abscheidung von 12 [%] der gebildeten höheren Stickstoffoxide möglich war.

## 5.5 Oxidation und Abscheidung von Schwefeldioxid und Schwefeltrioxid

Schwefeldioxid weist in Wasser abhängig vom pH-Wert eine sehr hohe Löslichkeit auf. Vor den Versuchen muss dementsprechend eine ausreichende Sättigung der Flüssigphase mit Schwefeldioxid erreicht werden. Dies gilt für jeden einzelnen betrachteten Betriebspunkt. Wird die Spannung, die Eingangskonzentration an Schwefeldioxid oder der Gasdurchsatz variiert, verschiebt sich die Gleichgewichtslage zwischen der Gas- und Flüssigphase. Dadurch muss eine erneute Annäherung an den Gleichgewichtszustand abgewartet werden, um eine Überlagerung der Oxidationsreaktion durch die Absorption oder Desorption von Schwefeldioxid zu unterbinden. Die Versuchsparameter der Versuche sind in Tabelle 5-10 angegeben.

	Durchflussrate	Temperatur	Konzentration von Zusätzen	Spannungsbereich
<b>Flüssigkeitsstrom</b>	60 [l/h]	19-25 [°C]	15 [g/l] Kaliumchlorid	14 – 21 [kV]
<b>Gasstrom</b>	1-4 [Nm <sup>3</sup> /h]	18,5 [°C]	150-280 [ppm] SO <sub>2</sub>	

Tabelle 5-10: Versuchsparameter der Versuche zur Schwefeldioxidabscheidung

### 5.5.1 Vorversuche

In den Vorversuchen wurde die Messtechnik auf Querempfindlichkeiten überprüft, und das Verhalten des Gesamtsystems unter Schwefeldioxidzufuhr untersucht. Der Limas 11 UV Gasanalysator zur Messung der Schwefeldioxidkonzentration zeigt keine Beeinflussung der Messung durch gebildetes Ozon aus dem Coronareaktor. Ein Einflussfaktor auf die Analysetechnik besteht in gebildetem und nicht im elektrischen Feld des Reaktors abgeschiedenem Schwefeltrioxid beziehungsweise dem resultierendem Schwefelsäureaerosol. Dieses beeinflusst die Schwefeldioxidmessung des Limas 11 UV Gasanalysators, weshalb zur Abscheidung des Schwefelsäureaerosols ein Glaswollefilter in die Messgasleitung eingebaut wurde. Die Schwefeldioxidkonzentration ist durch den Filtereinbau, von einem längeren Messgasweg abgesehen, unbeeinflusst. Der Sorbios Ozonmonitor zeigt keine signifikante Beeinflussung der Restozonmessung durch Schwefeldioxidanteile im Gas.

Die Versuchsergebnisse zeigen, dass die Desorption von gelöstem Schwefeldioxid, abhängig vom pH-Wert, die Abscheidung verschlechtert. Mit dem Ziel hohe Schwefelsäurekonzentrationen in der Anlage mit einem geschlossenen Flüssigkeitskreislauf für Reaktor und Wäscher zu erreichen, wird die Abscheiderate verringert.

### 5.5.2 Strom-Spannungs-Charakteristik bei der Zufuhr von Schwefeldioxid

In der Literatur wird das Strom-/Spannungs-Verhalten von Elektrofiltern als sehr sensitiv bezüglich elektronegativer Gase beschrieben. Im untersuchten Coronareaktor zeigte sich eine schwache Beeinflussung des Coronastromes durch Schwefeldioxid. In Abbildung 5-18 ist der spezifische Coronastrom bei zwei unterschiedlichen Konzentrationen an Schwefeldioxid im Feedgas, und zum Vergleich bei reiner Luft, aufgetragen. Während im mittleren Spannungsbereich die Differenz zwischen dem Verlauf beim Betrieb mit Luft und dem Betrieb unter Schwefeldioxidzufuhr relativ gering ist, vergrößert sich die Differenz mit zunehmender Spannung. Mit einer Schwefeldioxidkonzentration von 280 [ppm] verringert sich der Coronastrom bei einer Spannung von 21 [kV] auf 73 [%] des Coronastromes bezogen auf den Betrieb mit reiner Luft.

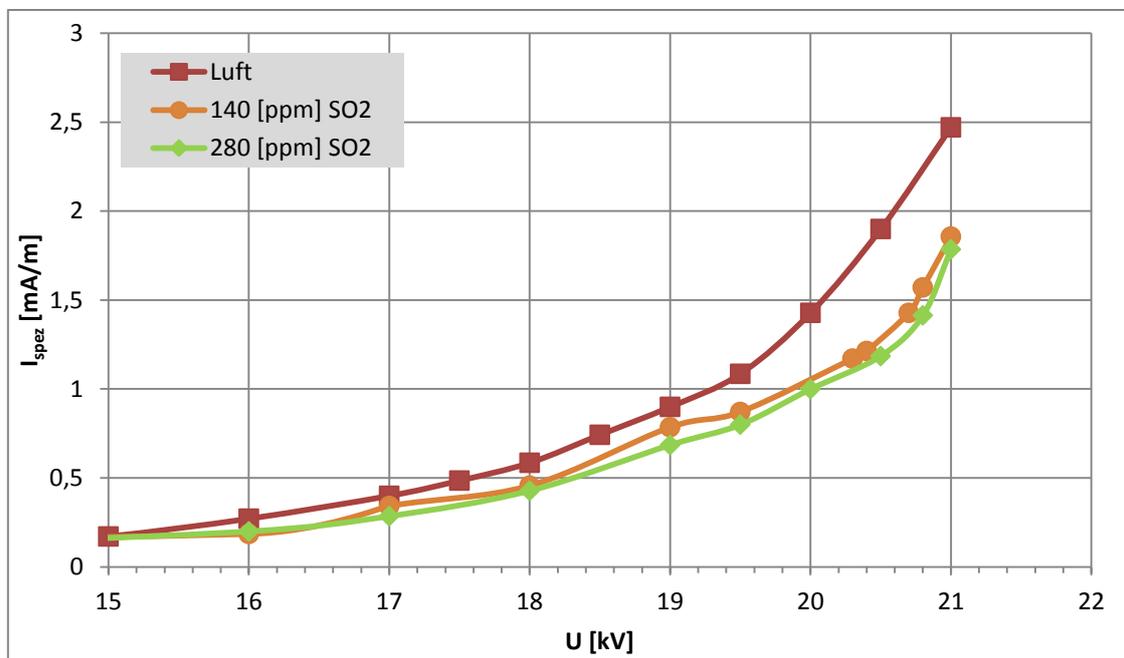


Abbildung 5-18: Strom-/Spannungs-Charakteristik unter Schwefeldioxidzufuhr, Gasdurchsatz: 2 [Nm<sup>3</sup>/h]

In Experimenten mit höherem Gasdurchsatz zeigte sich, dass der Unterschied in der Strom-Spannungs-Charakteristik gegenüber dem Verlauf ohne Schwefeldioxidzufuhr abnimmt. Bei einem Gasdurchsatz von sechs [Nm<sup>3</sup>/h], dargestellt in Abbildung 5-19, ist kein Unterschied im Verlauf erkennbar.

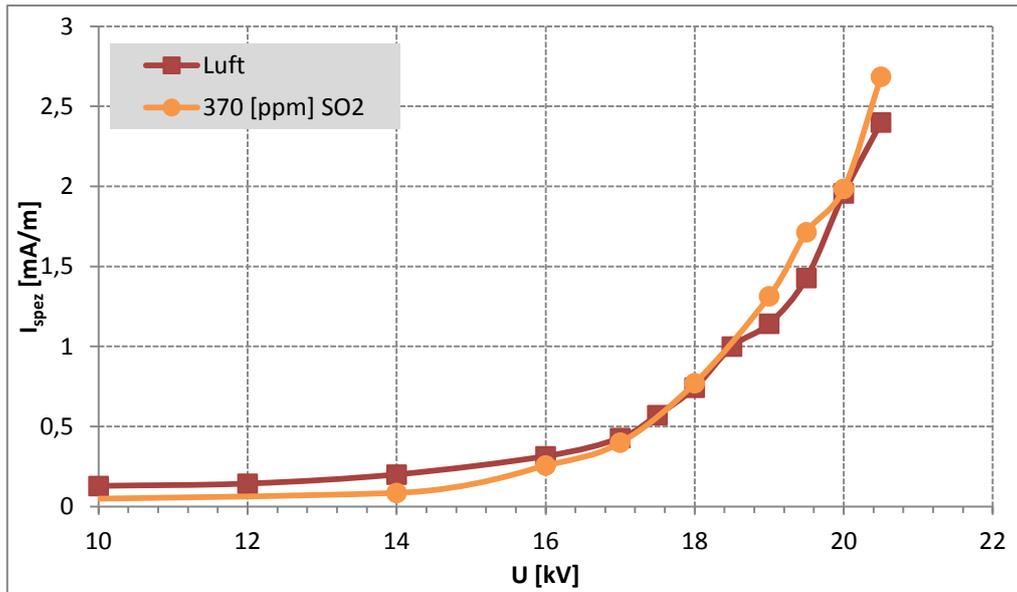


Abbildung 5-19: Strom-Spannungs-Charakteristik unter Schwefeldioxidzufuhr, Gasdurchsatz: 6 [Nm<sup>3</sup>/h]

### 5.5.3 Abscheidung von Schwefeldioxid

Die Oxidation von Schwefeldioxid zu Schwefeltrioxid direkt in der aktiven Coronazone mit Luftsauerstoff sowie in der passiven Zone mit Ozon aus der aktiven Coronazone zeigt einen relativ linearen Zusammenhang mit dem Coronastrom. Stellvertretend für die durchgeführten Versuche ist in Abbildung 5-20 der Verlauf der Konzentration an Schwefeldioxid über dem Coronastrom aufgetragen.

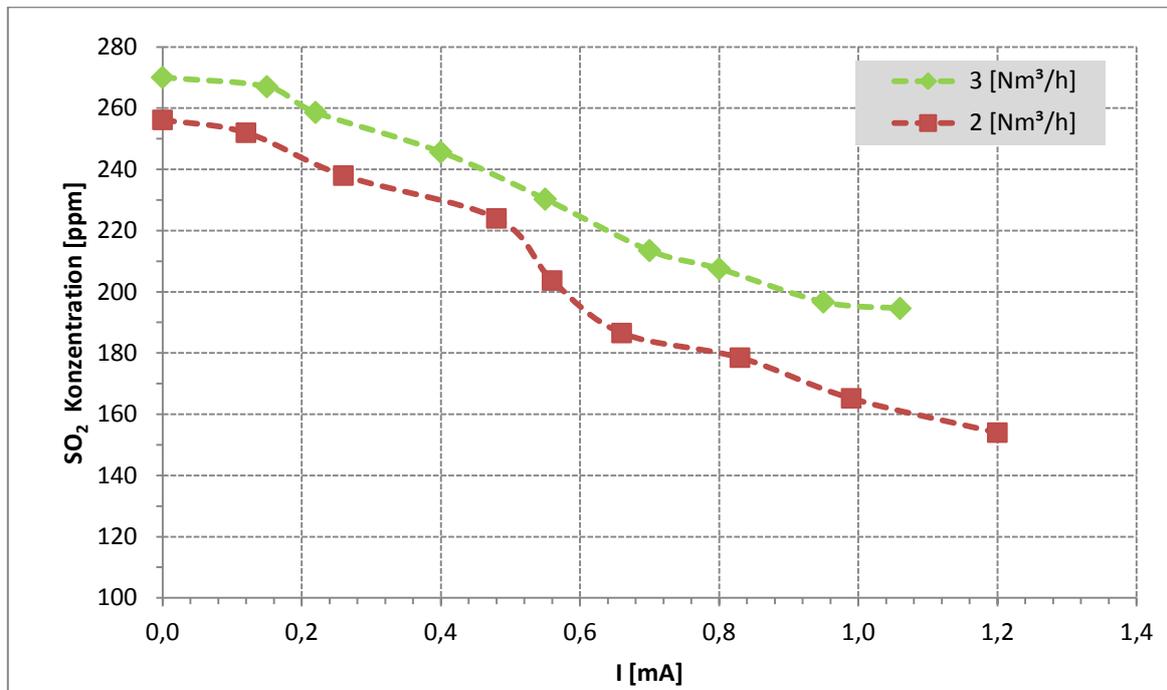


Abbildung 5-20: Verlauf der Schwefeldioxidkonzentration am Kopf der Anlage aufgetragen über dem Coronastrom, Eintrittskonzentration in die Anlage: 290 [ppm]

Der Vergleich zwischen der Schwefeldioxidkonzentration vor und nach dem Gaswäscher in Abbildung 5-21 zeigt, dass durch die nachgeschaltete Packungskolonnen eine leicht verbesserte Abscheidung von Schwefeldioxid möglich ist.

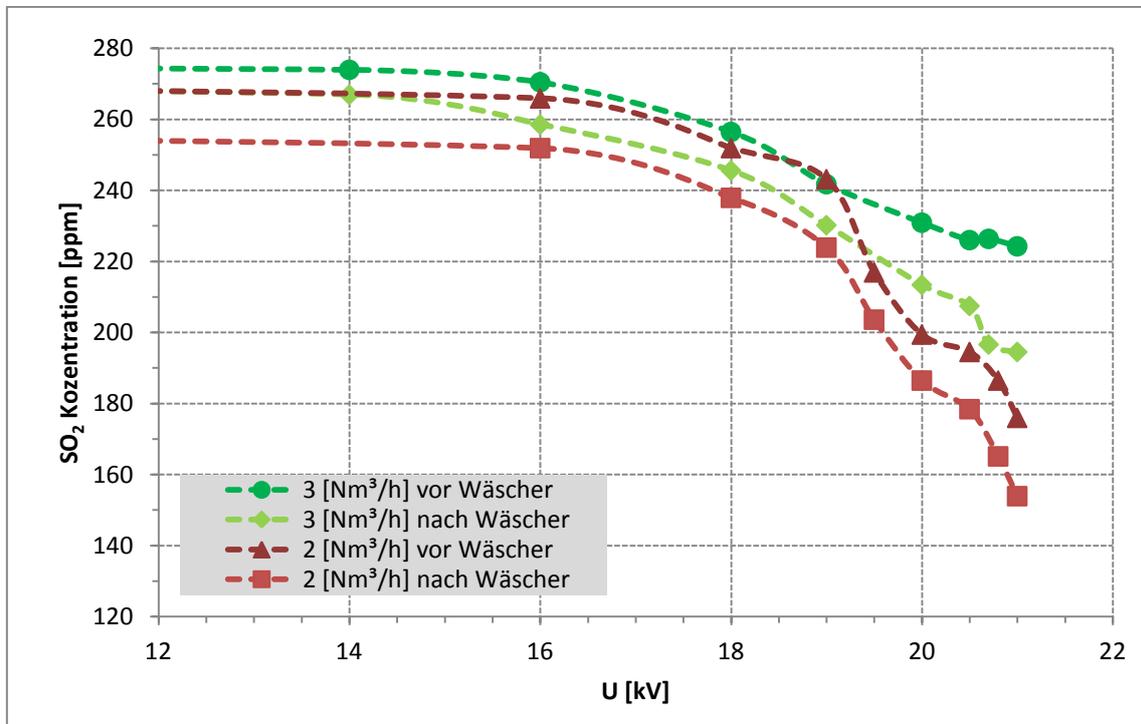


Abbildung 5-21: Vergleich der  $\text{SO}_2$  Konzentration vor und nach der Wäscherkolonne in Abhängigkeit der Spannung

#### Vergleich zwischen der Abscheidung von Schwefeldioxid und Stickstoffmonoxid

Der Vergleich in Abbildung 5-22 zwischen der Abscheiderate von Schwefeldioxid mit der Oxidationsrate von Stickstoffmonoxid zeigt einen signifikanten Unterschied auf. Während bei Stickstoffmonoxid eine Oxidation von knapp 80 [%] erreicht wird, liegt die Abscheiderate von Schwefeldioxid bei gleicher Gasgeschwindigkeit bei 35 [%]. Wird die Abscheiderate über der Spannung aufgetragen (Abbildung 5-23), so ist der deutliche Unterschied im Coronastrom ersichtlich. In Tabelle 5-11 ist ein Vergleich bei einer Betriebsspannung von 21 [kV] angegeben.

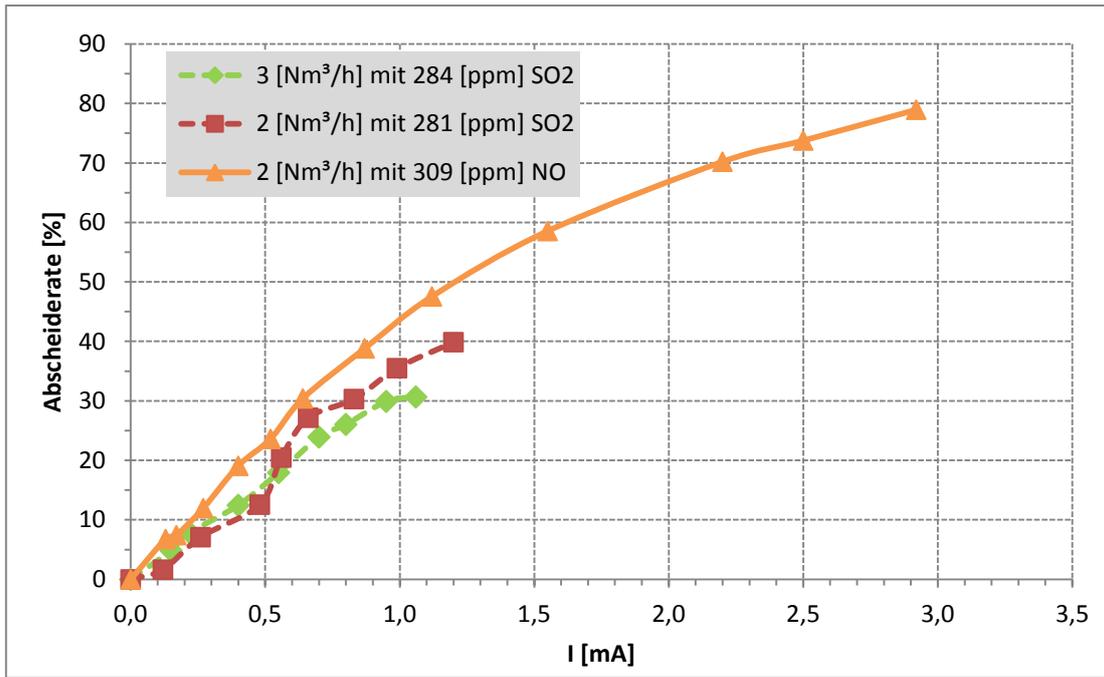


Abbildung 5-22: Abscheiderate von Schwefeldioxid und Stickstoffmonoxid in Abhängigkeit vom Coronastrom

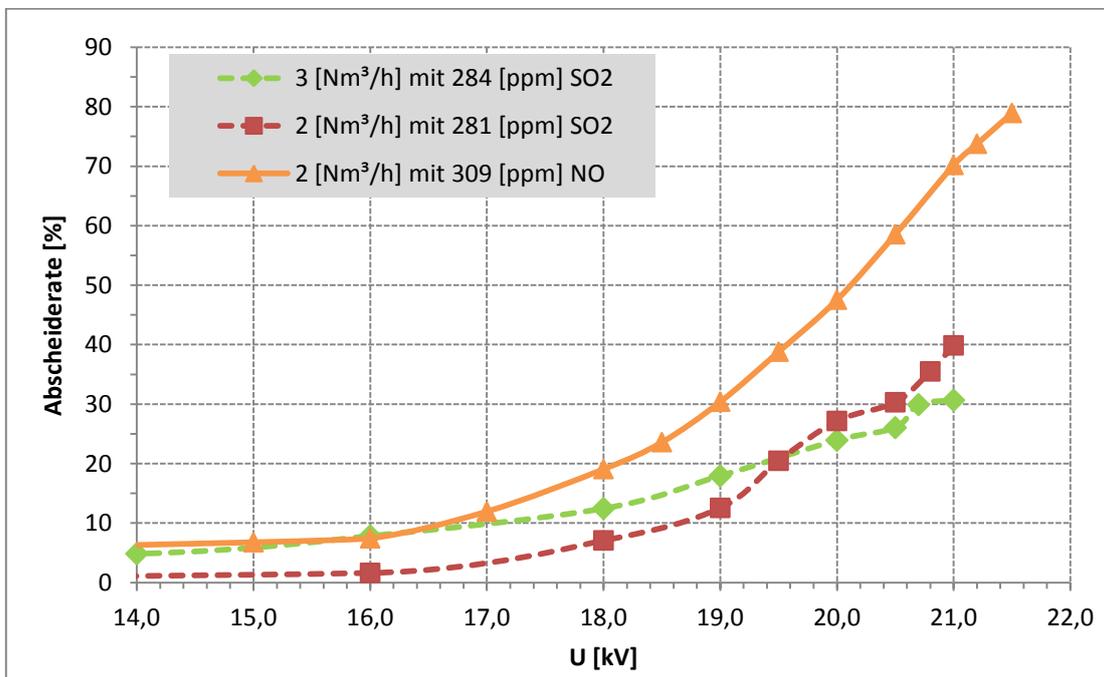


Abbildung 5-23: Abscheiderate von Schwefeldioxid und Stickstoffmonoxid in Abhängigkeit von der Spannung

	U [kV]	I [mA]	I bezogen auf $I_{NO}$ [%]	Abscheiderate [%]
2 [Nm <sup>3</sup> /h], 309 [ppm] NO	21	2,2	100	79
2 [Nm <sup>3</sup> /h], 281 [ppm] SO <sub>2</sub>	21	1,2	55	40
3 [Nm <sup>3</sup> /h], 284 [ppm] SO <sub>2</sub>	21	1,06	48	31

Tabelle 5-11: Vergleich zwischen Schwefeldioxid und Stickstoffmonoxid bei 21 [kV]

#### 5.5.4 Restozonkonzentration im Gas

In Abbildung 5-24 ist die Ozonkonzentration mit und ohne Zufuhr von Schwefeldioxid dargestellt. Während im niedrigeren Spannungsbereich die Konzentrationsunterschiede relativ gering sind, zeigt sich eine mit zunehmender Spannung größer werdende Konzentrationsdifferenz.

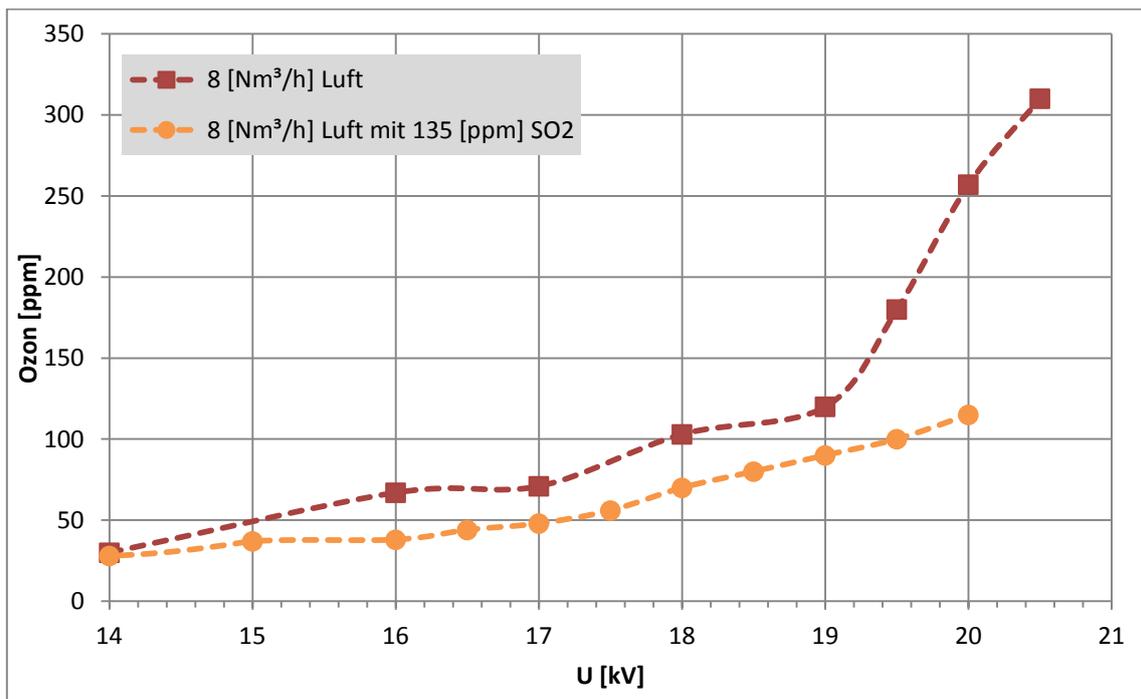


Abbildung 5-24: Restozongehalt im Gas bei Schwefeldioxidzufuhr

Ein Grund für diese Differenz liegt im Abbau von Ozon durch die Reaktion mit Schwefeldioxid. Daneben besteht noch ein Einfluss auf die Ozonbildung durch die durch Schwefeldioxidzufuhr veränderte Strom-/Spannungs-Charakteristik.

### 5.5.5 Schwefelsäurekonzentration und Massenbilanz über das Gesamtsystem

Im geschlossenen Flüssigkeitskreislauf erfolgt eine Anreicherung von Schwefelsäure und schwefliger Säure, und dementsprechend ein Absinken des pH-Wertes. Der exemplarische Verlauf des pH-Wertes während eines Versuchs ist in Abbildung 5-25 dargestellt.

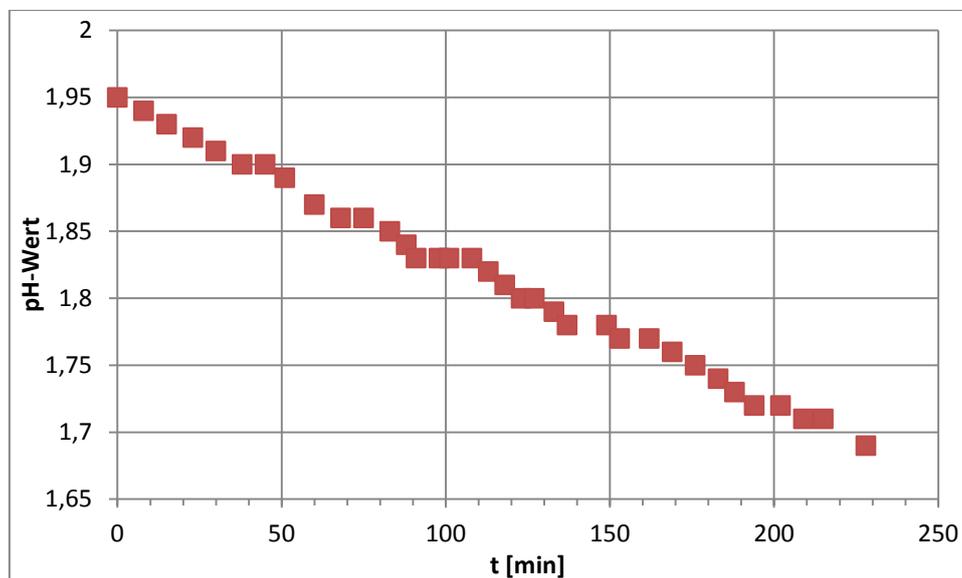


Abbildung 5-25: Verlauf des pH-Wertes unter Schwefeldioxidzufuhr während der Versuchsdurchführung,

#### Massenbilanz über das Gesamtsystem

Die abgeschiedene Menge der Schwefeloxide in der Anlage ergibt sich aus der Differenz der Schwefeldioxidkonzentration zwischen Gasein- und Gasaustritt und dem Anstieg der Säurekonzentration in der Flüssigphase. Die Säurekonzentration wurde über Säure-Basen-Titration bestimmt

Die Ergebnisse, zusammengefasst in Tabelle 5-12, zeigen, dass bei der Abscheidung des Schwefelsäureaerosols, beziehungsweise von Schwefeltrioxid, hohe Abscheideraten von über 70 [%] erreicht werden. Der Gesamtabscheidegrad an Schwefeloxiden liegt für die betrachteten Punkte, aufgrund der schlechteren Oxidation und Abscheidung von Schwefeldioxid, im Bereich um 20 [%]. Dies entspricht dem entgegengesetzten Verhalten zu den zuvor angeführten Versuchen zur Oxidation und Abscheidung der Stickstoffoxide.

Versuchsbedingungen	$\Delta\text{SO}_2$ [mg/Nm <sup>3</sup> ]	Zufuhr Versuchs- zeitraum [mol]	Änderung H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> Konzentration [mol]	SO <sub>2</sub> Oxidation [%]	Abscheidung Oxidations- produkte [%]	Gesamt- abscheidung [%]
2 [Nm <sup>3</sup> /h], 19,5 [kV], Feed: 284 [ppm] SO <sub>2</sub>	230	0,00246	0,00188	20,49	76,39	16
2 [Nm <sup>3</sup> /h], 20,5 [kV], Feed: 284 [ppm] SO <sub>2</sub>	302	0,00322	0,00275	30,33	85,22	26
4 [Nm <sup>3</sup> /h], 20 [kV], Feed: 147 [ppm] SO <sub>2</sub>	114	0,00244	0,00183	23,88	74,83	18
4 [Nm <sup>3</sup> /h], 20,5 [kV], Feed: 147 [ppm] SO <sub>2</sub>	140	0,00300	0,00229	30,35	76,46	23

Tabelle 5-12: Gesamtabseidegrad der Schwefeloxide

## 5.6 Oxidation von Methan

Die Oxidation von Methan war im Coronareaktor in den durchgeführten Experimenten nicht möglich.

Unabhängig von der Methankonzentration, im Bereich zwischen 20 und 1.000 [ppm], und unabhängig vom Gasdurchsatz zwischen einem und acht [Nm<sup>3</sup>/h], ergab sich keine Konzentrationsänderung über den Reaktor oder das Gesamtsystem. Eine partielle Oxidation von Methan zu Formaldehyd kann ebenfalls ausgeschlossen werden, da Formaldehyd eine sehr hohe Löslichkeit in Wasser aufweist, und sich dadurch die gemessene Konzentration an Kohlenwasserstoffen im Gas verringern würde.

Ein Einfluss auf die Strom-/Spannungs-Charakteristik durch Methan Konzentrationen bis zu 1.000 [ppm] im Feedgas wurde nicht festgestellt. Die kombinierte Zufuhr von Stickstoffmonoxid und Methan zeigte keine gegenseitige Beeinflussung.

## 6 Modellierung des Coronareaktors

### 6.1 Vergleich und Modellierung der Strom-/Spannungs-Charakteristiken

Nährungsbeziehungen zur Beschreibung des Strom-/Spannungs-Verhalten, wie die Theorie kleiner Ströme oder die Theorie mittlerer Ströme, sind nicht in der Lage die experimentellen Strom-/Spannungs-Charakteristiken des Coronareaktors mit der Bürstenelektrode wiederzugeben. Neben der Elektrodengeometrie stellen noch die niedrige Gasgeschwindigkeit unter einem [m/s], und die unterschiedlichen Gaszusammensetzungen Nichtidealitäten für die verfügbaren Modelle dar. Die Theorie kleiner Ströme (Gleichung 2-11), wurde zu dem in Gleichung 6-1 angeführten Modell [20] erweitert. Durch eine Parameteranpassung in TableCurve wurde das Modell an das experimentell ermittelte Strom-/Spannungs-Verhalten angepasst.

$$I = U^2 \cdot \left( \frac{U - U_0}{U_0} \right)^m \frac{\sqrt{3} \cdot K}{(R - r_{el})^2 \cdot \ln \left( \frac{R - r_{el}}{r_w} \right)} \left[ \frac{mA}{m} \right] \quad \mathbf{6-1}$$

R	Rohrradius; 38 [mm]
$r_{el}$	Radius der Bürstenelektrode; 4 [mm]
$r_w$	Drahtradius der einzelnen Elektrodenborste; 0.075 [mm]

Die veränderte Geometrie der Bürstenelektrode wird durch den Term  $(R - r_{el})$  berücksichtigt. Für den Drahtdurchmesser wird der Durchmesser eines Einzeldrahtes der Bürstenelektrode eingesetzt. Der niedrigere Coronastrom im Bereich niedriger Spannungen, und der folgende steile Anstieg des Stromes, wird durch den Term  $\frac{U^2}{U_0^m} \cdot (U - U_0)^m$  wiedergegeben. Der Exponent m wird durch Parameteranpassung ermittelt.

Die Gasgeschwindigkeitskorrektur der Coroneinsatzfeldstärke nach Gleichung 6-2 ist bei betrachteten Gasgeschwindigkeitsbereich unter einem [m/s] nicht möglich. Die Logarithmusfunktion in Gleichung 6-2 führt zu zwei Nullstellen und einer Polstelle nahe dem Wert Eins, und versagt daher zur Korrektur der Coroneinsatzfeldstärke, beziehungsweise der daraus berechneten Coroneinsatzspannung.

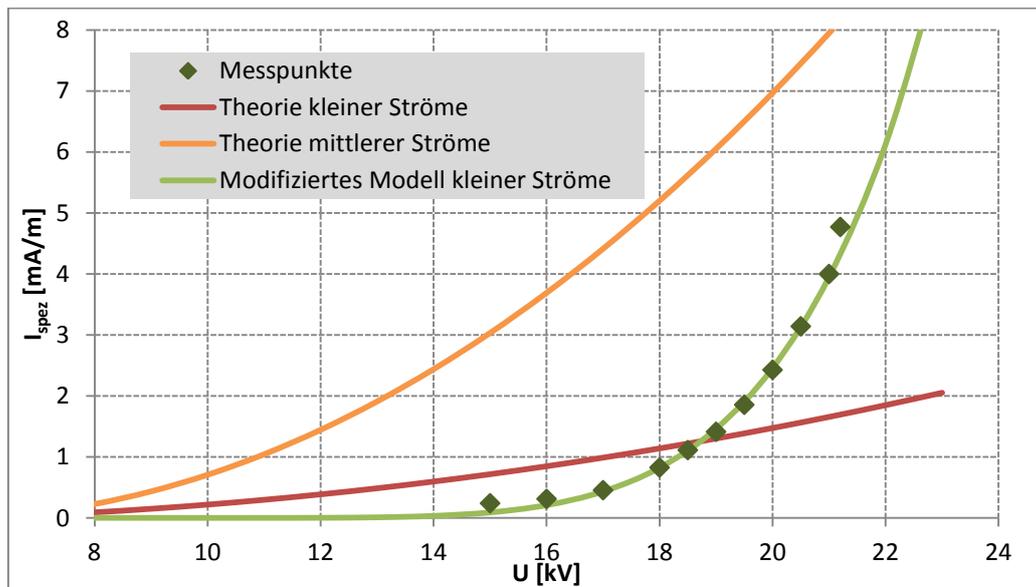
$$E_{0,korr} = E_0 * \left( 3 + 3 \cdot \ln(v) - \frac{0,23}{\ln(v)} \right) \quad \mathbf{6-2}$$

Demzufolge muss die Coroneinsatzspannung anderweitig an die Gasgeschwindigkeit angepasst werden. Die Coroneinsatzspannung wird nicht vorausberechnet, sondern in der

Parameteranpassung, gemeinsam mit dem Exponenten  $m$ , bestimmt, um das Strom-/Spannungs-Verhalten wiederzugeben.

### 6.1.1 Vergleich der einzelnen Strom-/Spannungs-Korrelationen

In Abbildung 6-1 ist ein exemplarischer Vergleich von Messpunkten mit der modifizierten Theorie kleiner Ströme, sowie den unveränderten Korrelationen angeführt.



**Abbildung 6-1: Vergleich der theoretischen Korrelation mit den experimentellen Ergebnissen und dem angepassten Modell; Gasdurchsatz: 4 [Nm<sup>3</sup>/h], 200 [ppm] Stickstoffmonoxid; Modellparameter: Exponent  $m=4$ , Coroneinsatzspannung  $U_0=9,9$  [kV]**

Die modifizierte Strom-/Spannungs-Korrelation ist in Abbildung 6-2 für unterschiedliche Gaszusammensetzungen, bei einem konstanten Gasdurchsatz von vier [Nm<sup>3</sup>/h] mit den Messpunkten verglichen. Die zugehörigen Parameter der Gleichung sind in Tabelle 6-1 zusammengefasst. Die Parameteranpassung führt zu einer guten Beschreibung der Strom-/Spannungs-Charakteristik der Bürstenelektrode.

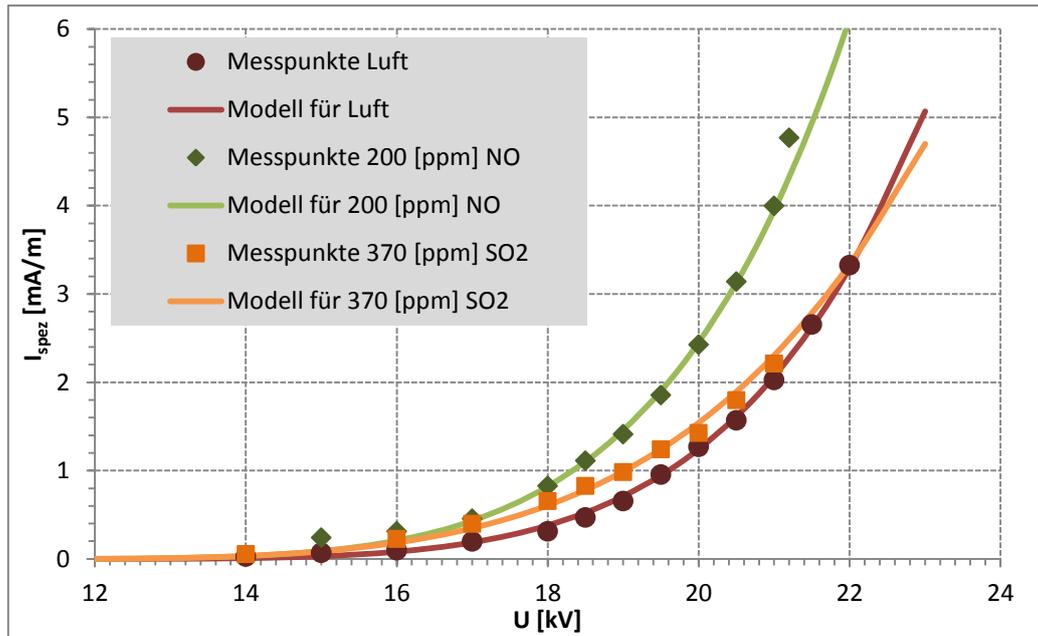


Abbildung 6-2: Vergleich zwischen Messwerten und Modell bei einem Gasdurchsatz von 4 [Nm<sup>3</sup>/h] mit unterschiedlicher Gaszusammensetzung; zugehörige Parameter in Tabelle 6-1

	Coronaeinsatzspannung $U_0$ [kV]	Exponent m	$R^2$
Luft	10,752	4	0,998
200 [ppm] Stickstoffmonoxid	9,905	4	0,990
370 [ppm] Schwefeldioxid	10,648	3	0,991

Tabelle 6-1: Parameter des empirischen Modells bei einem Gasdurchsatz von 4 [m<sup>3</sup>/h]

In Abbildung 6-3 ist die modifizierte Theorie mit den Messpunkten bei einer konstanten Konzentration von Stickstoffmonoxid von 200 [ppm] und drei unterschiedlichen Gasdurchsätzen dargestellt. Die zugehörigen Parameter der Gleichung sind in Tabelle 6-2 angeführt.

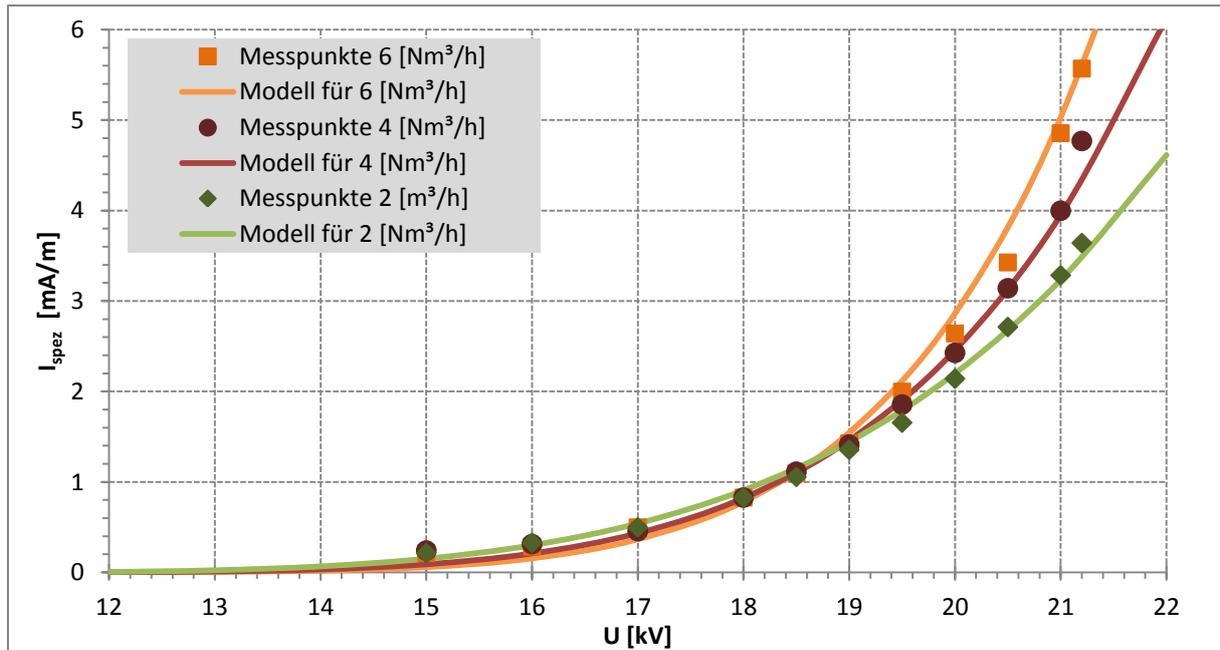


Abbildung 6-3: Vergleich zwischen Messdaten und Modellierung mit einer Stickstoffmonoxidkonzentration von 200 [ppm] bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen; Parameter in Tabelle 6-2

Gasdurchsatz, 200 [ppm] NO	Coronaeinsatzspannung $U_0$ [kV]	Exponent m	$R^2$
6 [Nm <sup>3</sup> /h]	9,771	5	0,991
4 [Nm <sup>3</sup> /h]	9,905	4	0,990
2 [Nm <sup>3</sup> /h]	10,057	3	0,994

Tabelle 6-2: Parameter des empirischen Modells bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen mit einer Konzentration von 200 [ppm] Stickstoffmonoxid

Der Nachteil der betrachteten Korrelation besteht darin, dass jeweils zwei Parameter angepasst werden müssen um die Strom-/Spannungs-Charakteristik beschreiben zu können. Eine Vorhersage des Coronastroms für eine nicht experimentell untersuchte Gaszusammensetzung oder Gasgeschwindigkeit ist nicht beziehungsweise nur näherungsweise möglich.

## 6.2 Spezifischer Energiebedarf

Der spezifische Energiebedarf ist ein Kriterium zur Beurteilung der Wirtschaftlichkeit der Anlage, und dient der Festlegung des Betriebszustandes. Die Betrachtung ist auf den Reaktor allein bezogen, und berücksichtigt nicht eine eventuelle Konzentrationsänderung über den nachgeschalteten Gaswäscher.

Die Berechnung des spezifischen Energiebedarfs und der Leistung bezieht sich auf die Leistung des Coronareaktors, ohne etwaige Wirkungsgradverluste des Hochspannungsgenerators zu berücksichtigen.

### 6.2.1 Energiebedarf der Ozonbildung

Der spezifische Energiebedarf der Ozonbildung zeigt eine signifikante Abhängigkeit vom Gasdurchsatz. Für sehr niedrige Gasgeschwindigkeiten steigt der spezifische Energiebedarf stark an. Wie Abbildung 6-4 zeigt, liegt der spezifische Energiebedarf pro Gramm Ozon bei einem Gasdurchsatz von 9,5 [m<sup>3</sup>/h] bei knapp unter zehn [Wh/g].

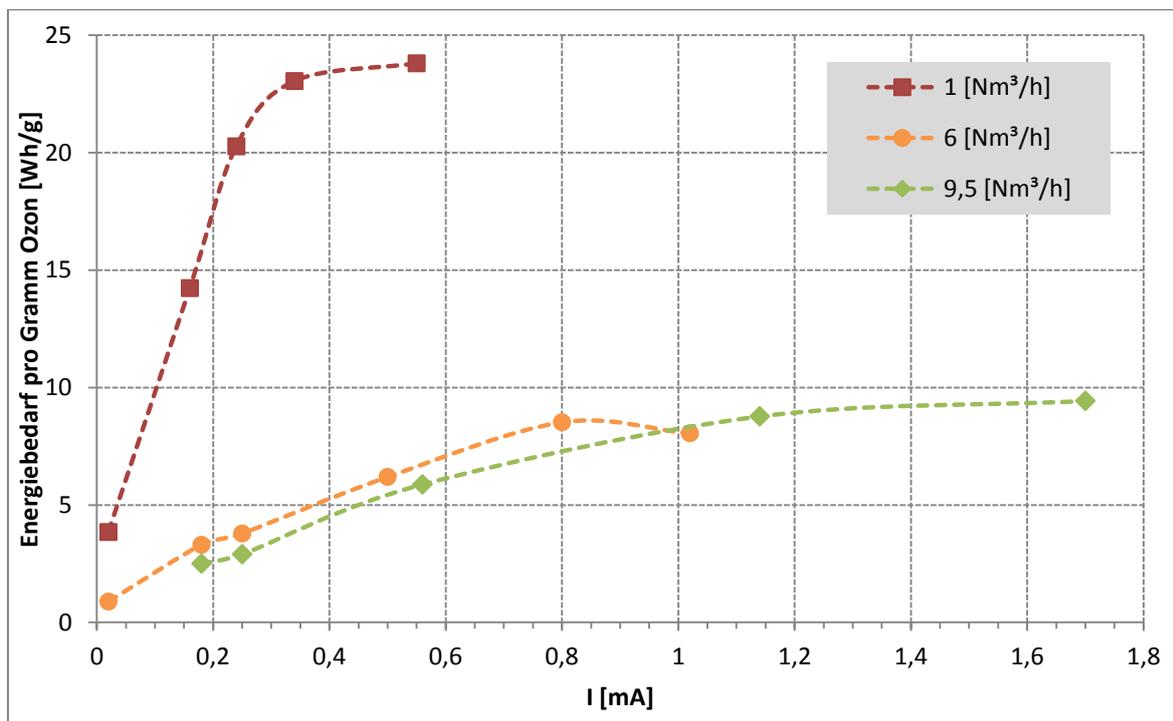


Abbildung 6-4: Spezifischer Energiebedarf der Ozonproduktion im Coronareaktor, aufgetragen über dem Coronastrom

Die maximal mögliche Ozonausbeute, bei Produktion aus reinem Sauerstoff, beträgt 398 [g/kWh]. Dies folgt aus dem Bildungsmechanismus für Ozon unter Berücksichtigung der Boltzmann-Verteilung der Energiezustände. Technische Ozongeneratoren für die Produktion von Ozon aus reinem Sauerstoff haben einen spezifischen Energiebedarf von acht [Wh/g], bei Ozonkonzentrationen zwischen 60 und 120 [g/Nm<sup>3</sup>]. Der Energiebedarf von Ozongeneratoren zur Ozonproduktion aus Luft liegt bei etwa 15 [Wh/g], mit Konzentrationen zwischen zehn und 20 [g/Nm<sup>3</sup>]. [21]

Verglichen mit technischen Ozongeneratoren liegt der Energiebedarf des Coronareaktors zur Produktion von Ozon in einem sehr effizienten Bereich. Die maximale Ozonkonzentration im Gas bei einer aktiven Elektrodenlänge von 0,7 [m], ist mit 0,61 [g/Nm<sup>3</sup>] bis maximal 0,81 [g/Nm<sup>3</sup>] jedoch deutlich niedriger verglichen mit der Austrittskonzentration von Ozongeneratoren.

In Abbildung 6-5 ist die stündliche Ozonproduktion über der elektrischen Leistung des Coronareaktors aufgetragen.

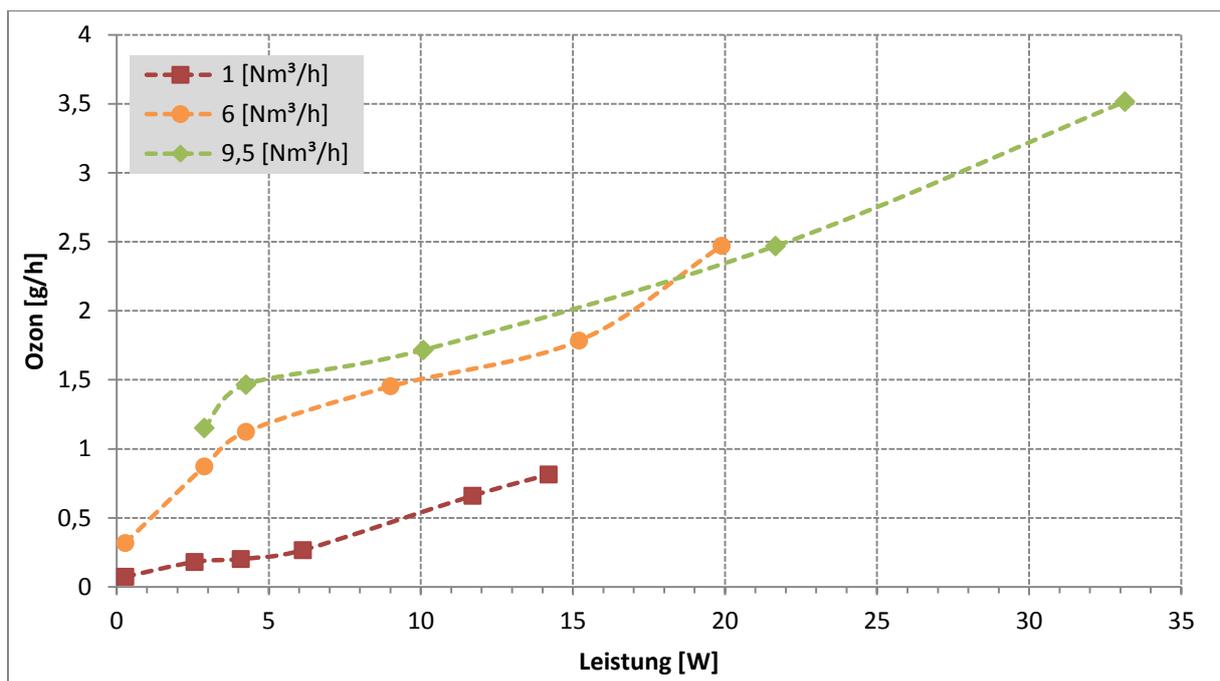


Abbildung 6-5: Ozonproduktion aufgetragen über der Leistung bei verschiedenen Gasdurchsätzen

### 6.2.2 Spezifischer Energiebedarf der Oxidation von Stickstoffmonoxid

Der Energiebedarf zur Oxidation von Stickstoffmonoxid zeigt ein ähnliches Verhalten wie der spezifische Energiebedarf zur Ozonbildung. In Abbildung 6-6 ist ein Vergleich des spezifischen Energiebedarfs bei verschiedenen Gasgeschwindigkeiten, mit einer konstanten Feedkonzentration an

Stickstoffmonoxid, dargestellt. Niedrige Gasgeschwindigkeiten sind dementsprechend energetisch weniger effizient als hohe, wobei der Unterschied mit zunehmender Gasgeschwindigkeit geringer wird.

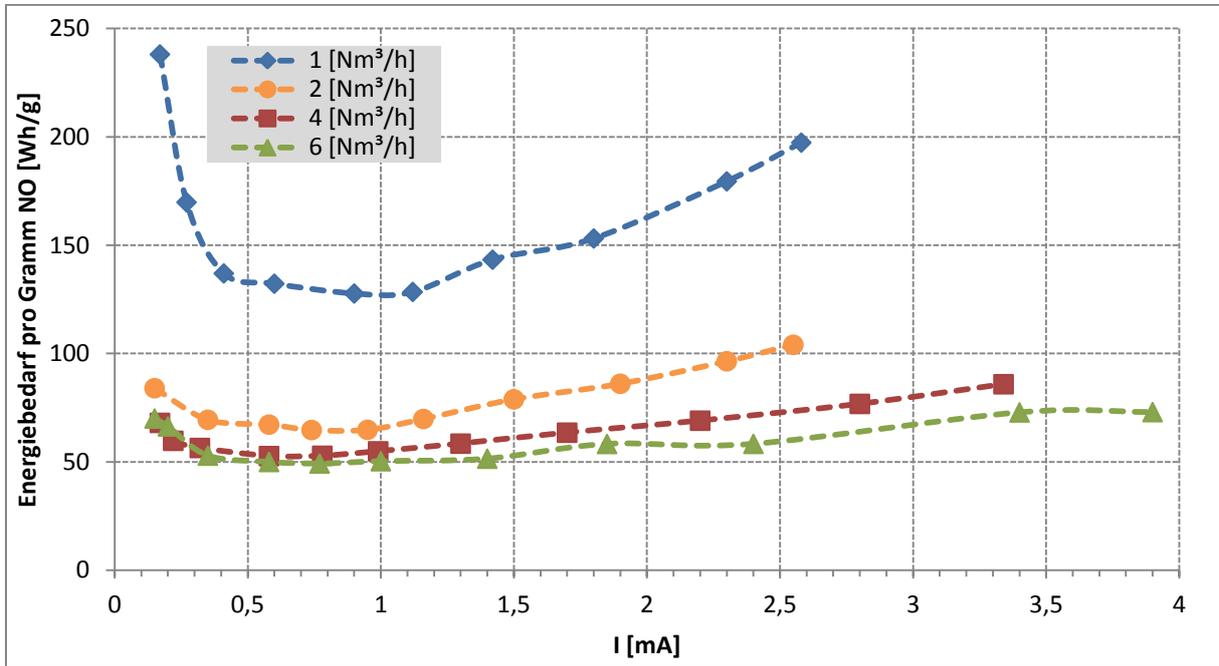


Abbildung 6-6: Energiebedarf zum Abbau von Stickstoffmonoxid mit einer Feedkonzentration von 200 [ppm] bei verschiedenen Gasdurchsätzen

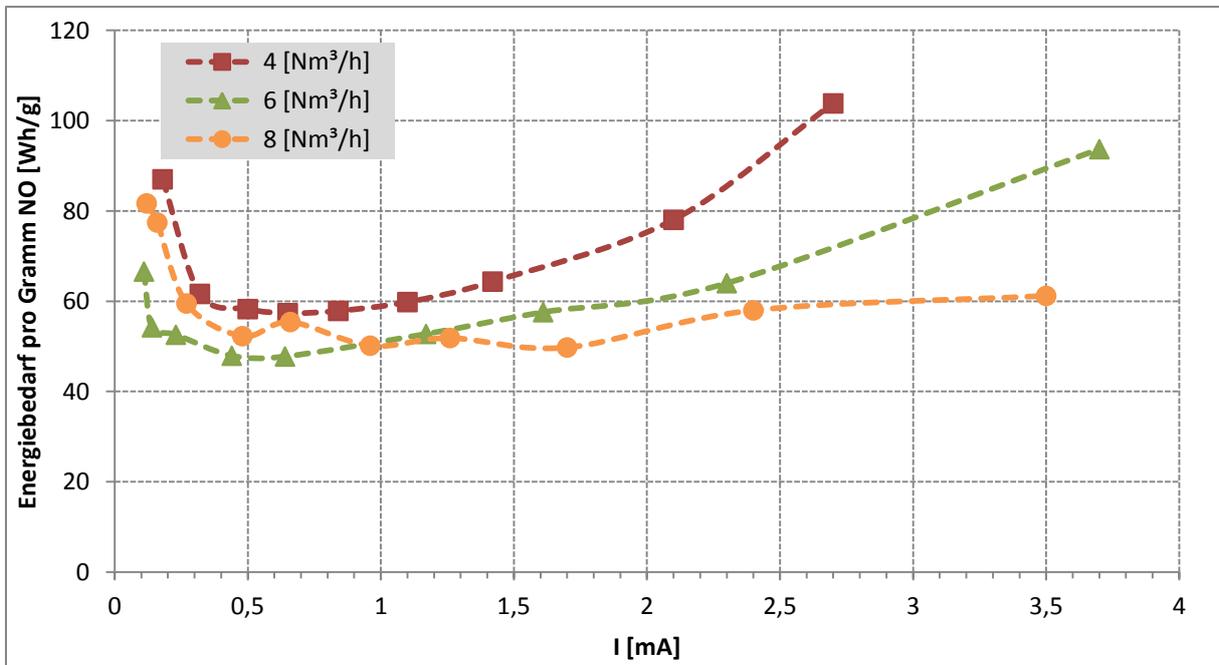


Abbildung 6-7: Energiebedarf zur Oxidation von Stickstoffmonoxid mit einer Feedkonzentration von 100 [ppm]

In Abbildung 6-7 ist der Energiebedarf bei einer verringerten Feedkonzentration von 100 [ppm] an Stickstoffmonoxid dargestellt. Der stärkere Anstieg der Kurven zum Ende verglichen mit Abbildung 6-6 ergibt sich dadurch, dass bei der niedrigeren Feedkonzentration bereits ein höherer Umsatz an Stickstoffmonoxid erreicht wurde, und sich dementsprechend die Energieeffizienz verschlechtert.

Ein Vergleich bei konstanter Gasgeschwindigkeit mit unterschiedlicher Feedkonzentration ist in Abbildung 6-8 angeführt. Insbesondere bei sehr niedrigen Gaskonzentrationen (11 [ppm]) steigt der spezifische Energiebedarf stark an, wodurch die Oxidation energetisch ineffizient wird.

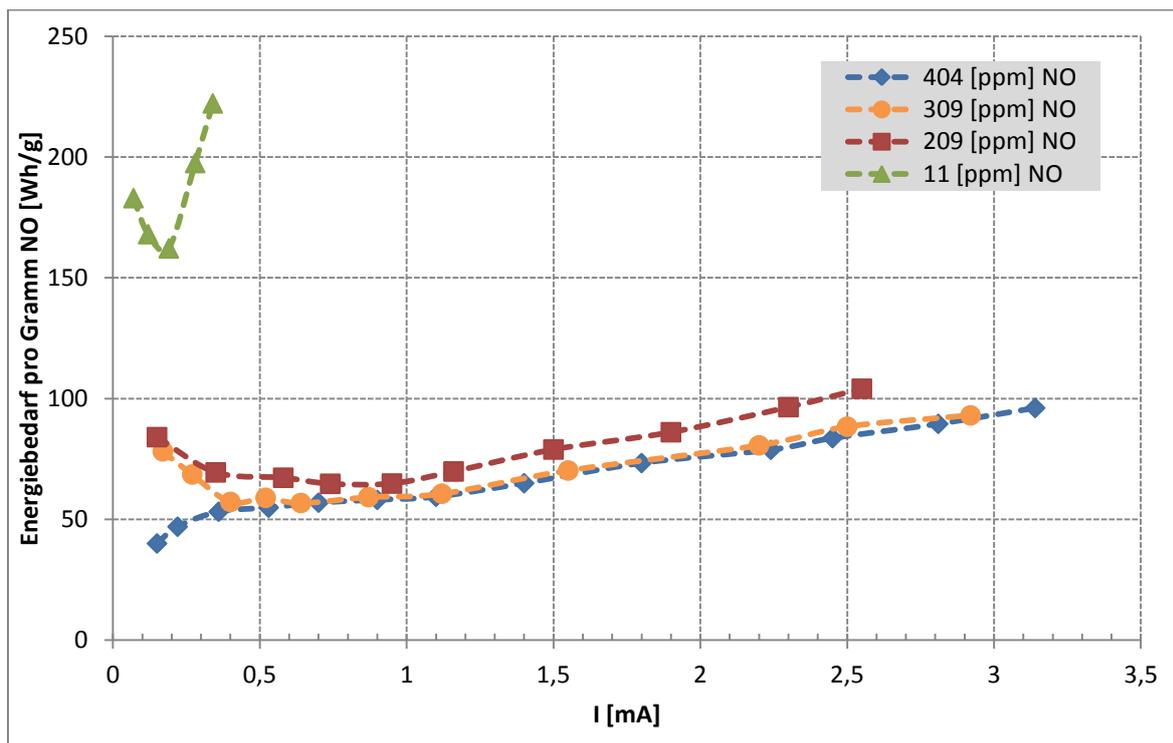


Abbildung 6-8: Energiebedarf zur Abscheidung von Stickstoffmonoxid bei einem konstanten Gaskursatz von 2 [Nm<sup>3</sup>/h] mit unterschiedlichen Feedkonzentrationen an Stickstoffmonoxid

Der spezifische Energiebedarf zur Oxidation von einem Gramm Stickstoffmonoxid liegt deutlich über dem Energiebedarf zur Produktion von einem Gramm Ozon. Ein Aspekt für den höheren Energiebedarf ist das geänderte Strom-/Spannungs-Verhalten des Coronareaktors bei der Zufuhr von Stickstoffmonoxid. Daneben existieren zwei unterschiedliche Reaktionswege zur Oxidation von Stickstoffmonoxid. Die direkte Oxidation in der Corona, und die Oxidation außerhalb der aktiven Coronazone mit gebildetem Ozon. Dadurch ist der direkte Vergleich des Energiebedarfs der Ozonbildung und der Oxidation nur bedingt möglich.

### 6.3 Modellierung der Oxidation

Wie zuvor beschrieben, läuft die Oxidation im Coronareaktor nach zwei unterschiedlichen Reaktionsmechanismen ab. Die Oxidation in der aktiven Zone der Coronaentladung, induziert durch die Entladung, kann mit Sauerstoff oder Ozon ablaufen, während die Oxidation in der passiven Coronazone mit Ozon, welches in der aktiven Zone gebildet wurde, abläuft. Dementsprechend kann die Reaktionskinetik modelliert werden. Die Auswertung ist auf die Konzentration nach dem Reaktor bezogen.

#### Reaktionsordnung

Die Oxidation von Stickstoffmonoxid lässt sich über einen weiten Bereich als Reaktion erster Ordnung beschreiben. Es zeigt sich dabei eine signifikante Abhängigkeit von der Feedkonzentration an Stickstoffmonoxid im Gas und der Gasgeschwindigkeit im Reaktor. Mit sinkender Konzentration, und sinkender Gasgeschwindigkeit geht die Reaktion über in eine Zwischenordnung zwischen Nullter und Erster Reaktionsordnung. In Abbildung 6-9 ist der Verlauf der normierten Reaktionsgeschwindigkeitskonstante bei einer sehr niedrigen Gasgeschwindigkeit für eine hohe Feedkonzentration, und in Abbildung 6-10 für eine mittlere Konzentration, dargestellt.

Des Weiteren zeigen die Abbildungen, dass die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante im Bereich niedriger Coronaströme, respektive mittlerer Spannungen, zu einer stärkeren Abweichung neigt.

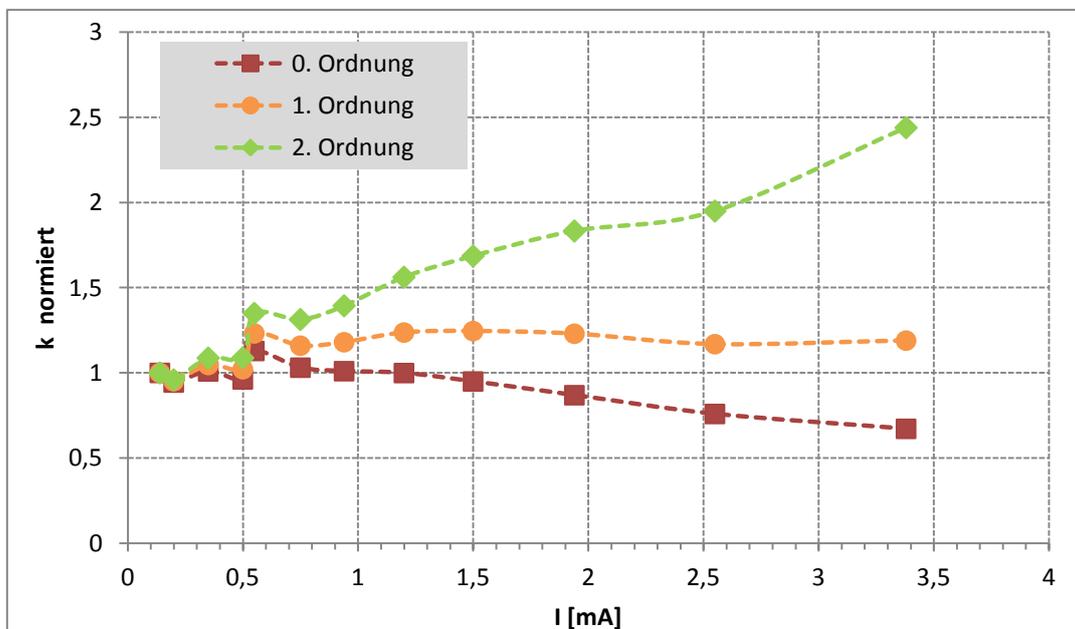


Abbildung 6-9: Normierte Reaktionsgeschwindigkeitskonstante in Abhängigkeit von der Reaktionsordnung, Gasdurchsatz: 1[Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 506 [ppm] NO

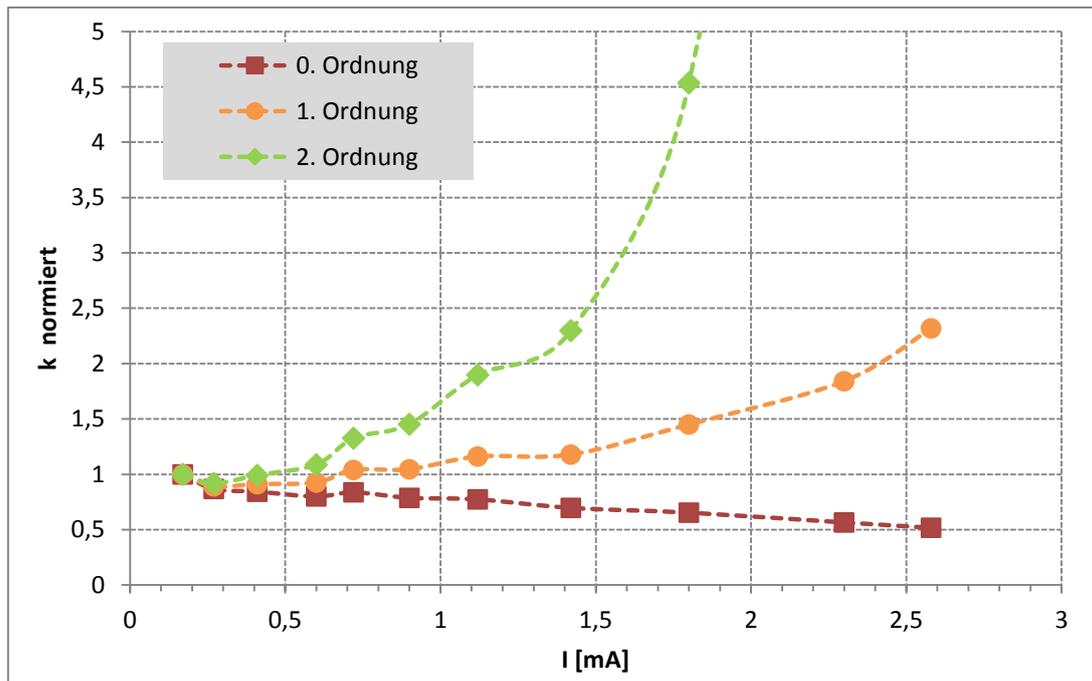


Abbildung 6-10: Normierte Reaktionsgeschwindigkeitskonstante in Abhängigkeit von der Reaktionsordnung, Gasdurchsatz: 1[Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 230 [ppm] NO

Die Reaktion von Schwefeldioxid zeigt stärkere Abweichungen von der idealen Kinetik als die Reaktion von Stickstoffmonoxid. Die exakte Bestimmung der Reaktionsordnung war, bedingt durch die stärkeren Konzentrationsschwankungen, nicht möglich. In der Auswertung wurde die Oxidation von Schwefeldioxid ebenfalls als Reaktion Erster Ordnung betrachtet.

### Reaktionskinetische Auswertung

Der Konzentrationsverlauf wurde mit der Funktion nach Gleichung 6-3 beschrieben. In Abbildung 6-11 ist ein exemplarischer Vergleich des Kurvenfits mit den Messpunkten bei einem Gasdurchsatz von zwei [Nm<sup>3</sup>/h] dargestellt. Die Fitparameter für die dargestellten Messkurven, sowie für alle weiteren Versuchsreihen, sind in Anhang 9.7 angeführt.

$$c_A = A \cdot e^{-B \cdot I} + C \cdot e^{-D \cdot I} \quad 6-3$$

Der Konzentrationsanstieg bei niedrigen Feedkonzentrationen von Stickstoffmonoxid (10 und 50 [ppm]), durch die Bildung von Stickstoffmonoxid bei höherer Spannung, kann durch die Fitfunktion nicht beschrieben werden.

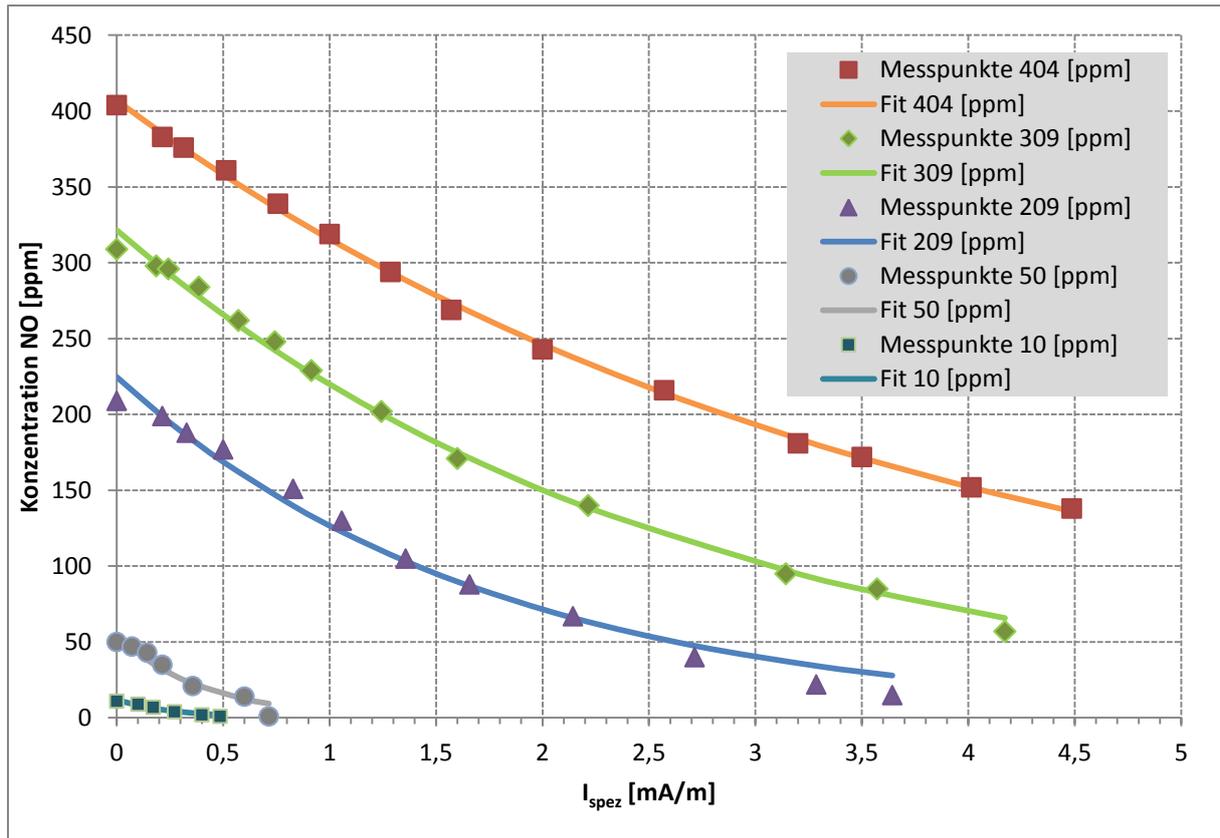


Abbildung 6-11: Vergleich der Fitfunktion mit den Messpunkten, Gasdurchsatz:  $2[\text{Nm}^3/\text{h}]$ ; Fitparameter: siehe Anhang

### Bilanz um den Reaktor

Der Coronareaktor kann als Rohrreaktor angesehen werden. Es muss davon ausgegangen werden, dass die Strömung im Einlassbereich stärker von der idealen Pfropfenströmung abweicht. Daneben kommt es im Kopf des Coronareaktors zur Ausbildung von Strömungstotzonen. In der Modellierung wurden diese Nichtidealitäten vernachlässigt und eine Betrachtung unter der Annahme eines idealen Rohrreaktors durchgeführt.

Die Bilanzgleichung des Rohrreaktors ist in Gleichung 6-4 angeführt. Für den Coronareaktor lässt sich unter Berücksichtigung des Coronastromes die Bilanzgleichung zu Gleichung 6-5 umformen. [22; 23]

$$F_A = (F_A + dF_A) + (-r_A)dV \quad 6-4$$

$$dF_A = r_A \cdot dL \cdot I_{\text{spez}} \quad 6-5$$

Die Reaktionsgeschwindigkeit kann, wie Gleichung 6-6 zeigt, über zwei getrennte Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten beschrieben werden. Dabei entspricht  $k_1$  dem Einfluss der Coronaentladung, und  $k_2$  beschreibt den Oxidationseffekt durch Ozon. Die einzelnen Geschwindigkeitskonstanten, für eine Reaktion erster Ordnung wurden aus den Fitfunktionen nach

Gleichung 6-3 ermittelt. Wird auf die Aufspaltung verzichtet, folgt die Reaktionsgeschwindigkeit nach Gleichung 6-7. Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten sind in Anhang 9.7 aufgelistet.

$$-r_A = k_1 c_A + k_2 c_A \quad 6-6$$

$$-r_A = \tilde{k} c_A \quad 6-7$$

Die Konzentration, für die Reaktion erster Ordnung ohne Aufspaltung der Reaktionsgeschwindigkeitskonstante, errechnet sich nach Gleichung 6-8.

$$c_A = c_{A,0} \cdot e^{\frac{-k \cdot I_{spez} \cdot L}{F_{A,0}}} \quad 6-8$$

In Abbildung 6-12 sind die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten der einzelnen Versuchsreihen von Stickstoffmonoxid über dem Gasdurchsatz dargestellt. Wird ein Punkt mit konstantem Gasdurchsatz betrachtet, so zeigt sich, dass die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante eine Funktion der Feedkonzentration an Stickstoffmonoxid ist. Diese Abhängigkeit zeigt keinen Trend in eine bestimmte Richtung auf. Zunächst erfolgt ein Anstieg bei Konzentrationen zwischen 10 und 100 [ppm], wohingegen bei höheren Feedkonzentrationen die Geschwindigkeitskonstante wieder leicht abfällt.

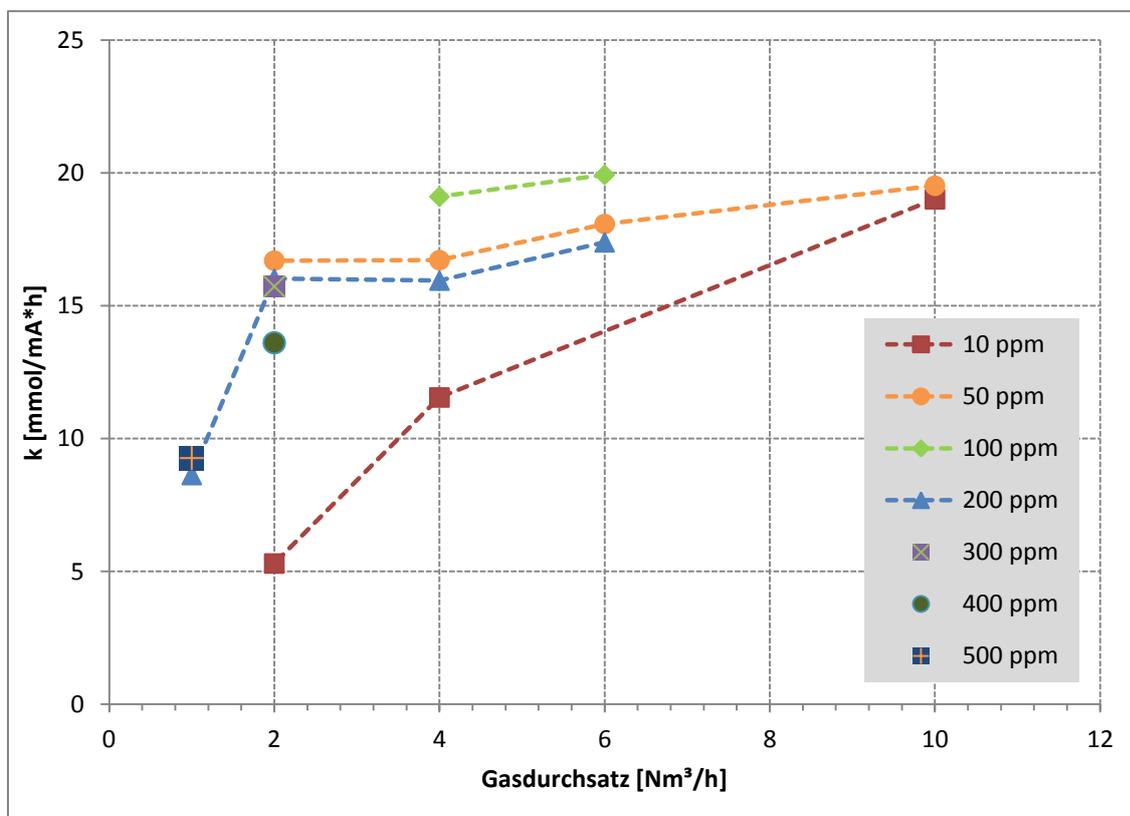


Abbildung 6-12: Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für verschiedene Feedkonzentrationen an NO

Aus den einzelnen Versuchsreihen bei konstanter Gasgeschwindigkeit im Reaktor, wurde die über die Konzentration gemittelte Reaktionsgeschwindigkeit ermittelt. In Abbildung 6-13 ist der Verlauf der gemittelten Geschwindigkeitskonstante dargestellt. Die Versuchsreihe mit einer Konzentration von 10 [ppm] an Stickstoffmonoxid wurde dabei aufgrund der größeren Abweichung nicht berücksichtigt. Bei einer höheren Gasgeschwindigkeit liegt die Geschwindigkeitskonstante bei einer Feedkonzentration von 10 [ppm] hingegen quasi gleichauf mit jener mit 50 [ppm].

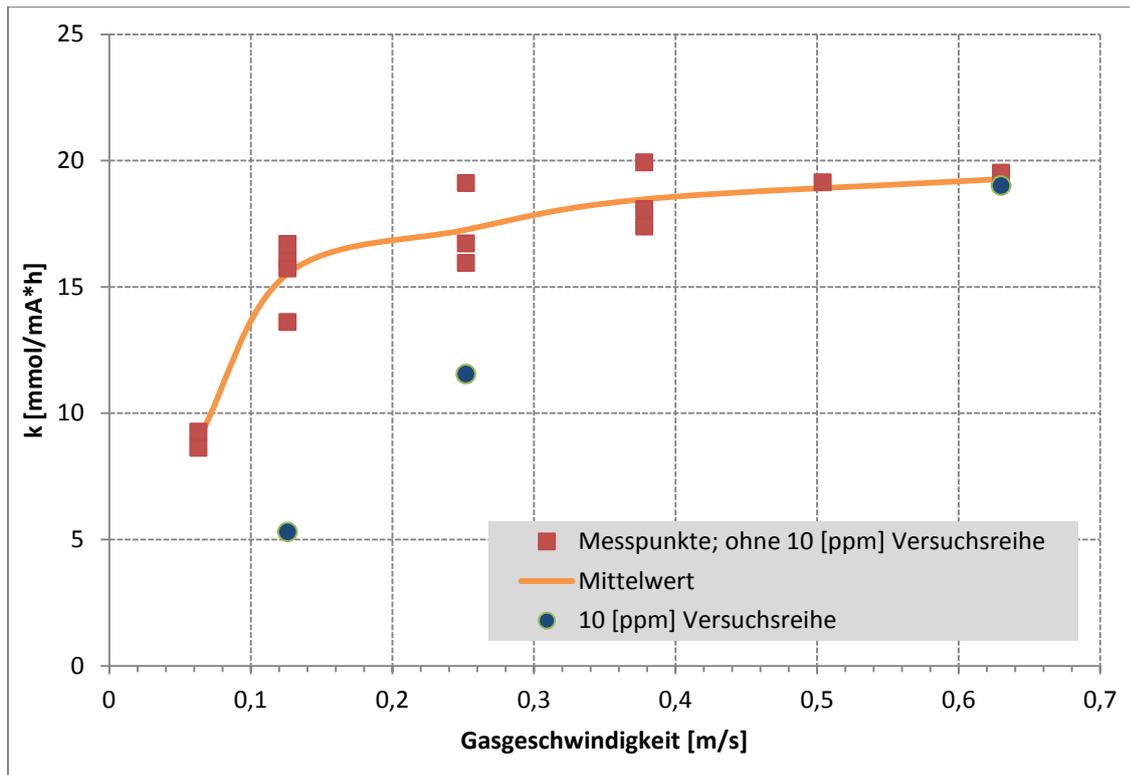


Abbildung 6-13: Mittelwert der Reaktionsgeschwindigkeit der Oxidation von NO über der Gasgeschwindigkeit

In Abbildung 6-14 ist der aus dem gemittelten  $k$  berechnete Konzentrationsverlauf bei einer Gasgeschwindigkeit von 0,13 [m/s] dargestellt. Der Konzentrationsverlauf errechnet sich nach Gleichung 6-8. Die beste Übereinstimmung kann für eine Feedkonzentration von 309 [ppm] erreicht werden, für den Verlauf bei 404 [ppm] ergibt sich eine stärkere Abweichung. Wie Abbildung 6-12 zeigt, ist die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für diese Versuchsreihe deutlich niedriger als der sich ergebende Mittelwert.

Abbildung 6-15 zeigt den Vergleich des aus dem gemitteltem  $k$ -Wert berechneten Konzentrationsverlauf mit den einzelnen Messpunkten bei einem Gasdurchsatz von 4 [Nm<sup>3</sup>/h].

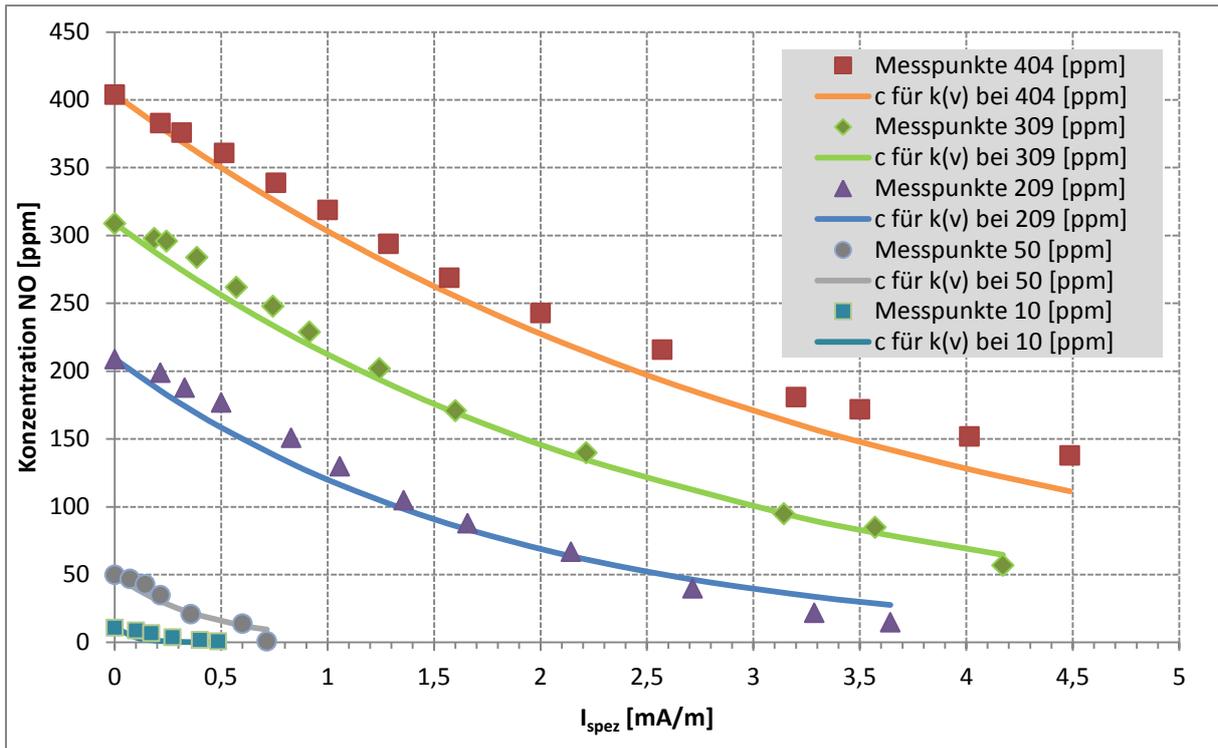


Abbildung 6-14: Konzentrationsverlauf für gemittelttes  $k(v)$  bei 2 [Nm<sup>3</sup>/h], verglichen mit den Messpunkten,  $k(v)=15,515$  [mmol/mA\*h]

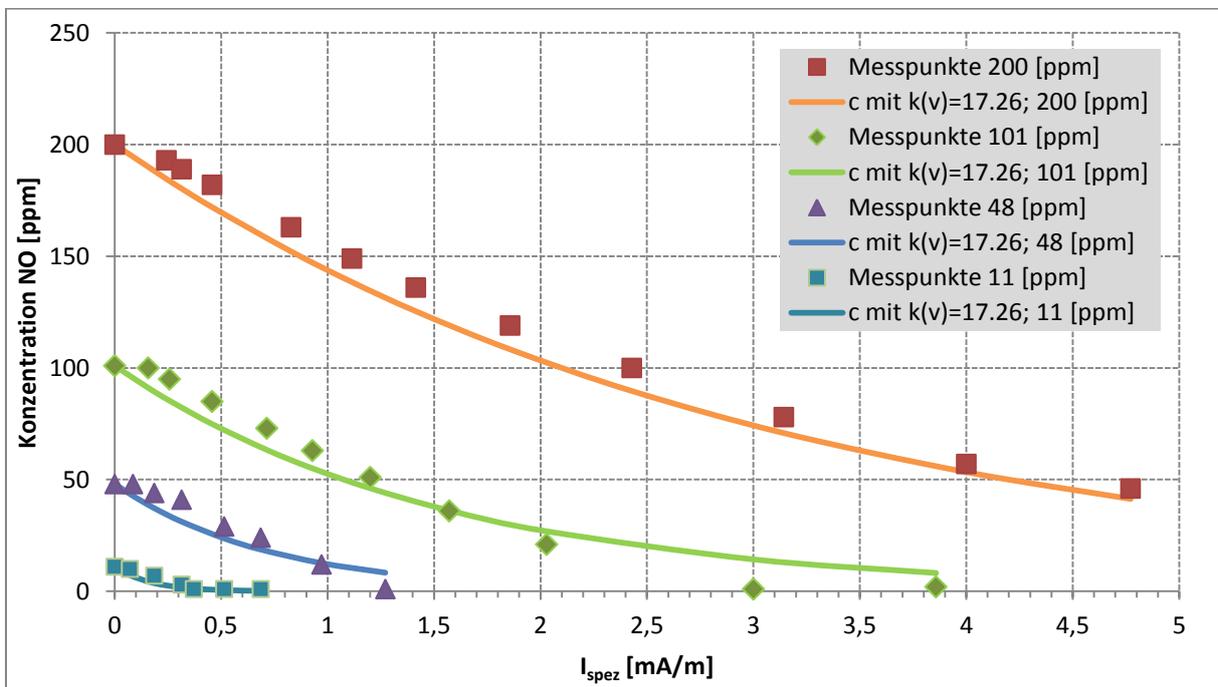


Abbildung 6-15: Konzentrationsverlauf für gemittelttes  $k(v)$  bei 4 [Nm<sup>3</sup>/h], verglichen mit den Messpunkten,  $k(v)=17,26$  [mmol/mA\*h]

Erfolgt die Beschreibung des Konzentrationsverlaufs über die berechnete Geschwindigkeitskonstante der jeweiligen Versuchsserie, so ergibt sich eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den Messpunkten. Für die Versuchsreihen mit Schwefeldioxid zeigt sich, wie aus Abbildung 6-16 ersichtlich, eine starke Schwankung der Messpunkte um den berechneten Konzentrationsverlauf.

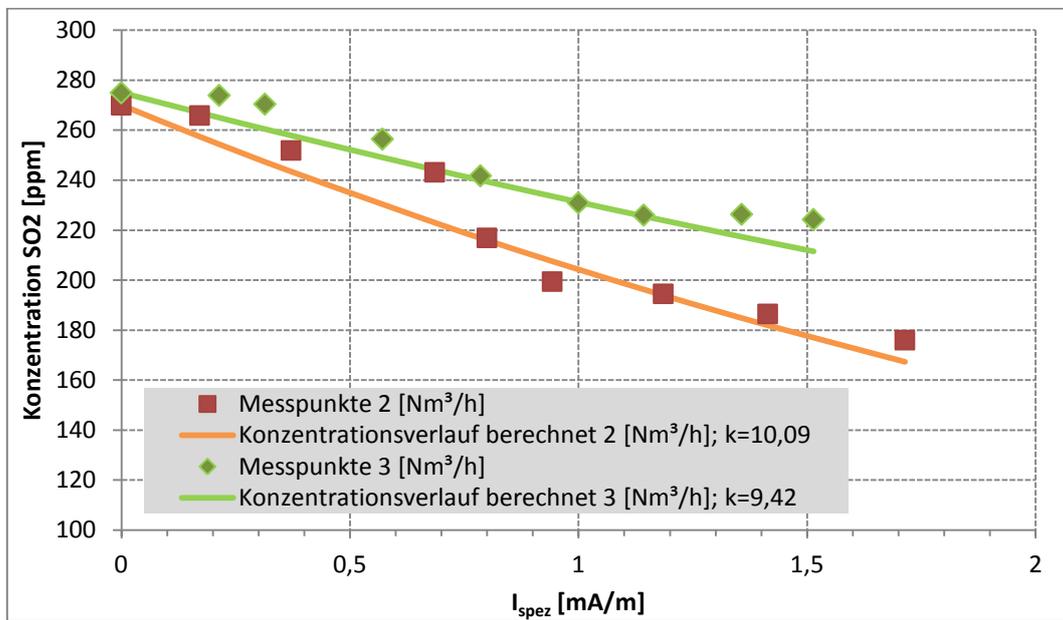


Abbildung 6-16: Berechneter Konzentrationsverlauf von Schwefeldioxid verglichen mit den Messpunkten

## 7 Zusammenfassung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war, die bestehende Anlage des Coronareaktors zu erweitern, für die kontinuierliche Gasmessung umzurüsten, und die Oxidation und Abscheidung verschiedener gasförmiger Schadstoffe zu untersuchen. Ein gepackter Gaswäscher wurde dem Coronareaktor nachgeschaltet, und der geschlossene Flüssigkeitskreislauf des Reaktors um den Wäscher erweitert. Die aktive Elektrodenlänge im Reaktor beträgt 0,7 [m], bei einem Innendurchmesser des Reaktors von 76 [mm]. Betrieben wurde der Coronareaktor im Spannungsbereich zwischen 12 und 22 [kV]. Als Elektrode wurde eine Bürstenelektrode mit einem Bürstendurchmesser von 8 [mm], und einem Drahtdurchmesser von 0,15 [mm] eingesetzt. Der Gaswäscher hat eine Stoffaustauschfläche von 2,24 [m<sup>2</sup>], für das Gesamtsystem mit der Fallfilmoberfläche des Reaktors ergibt sich die Stoffaustauschfläche zu 2,43 [m<sup>2</sup>]. In der experimentellen Untersuchung wurde die Oxidation von Schwefeldioxid, Stickstoffmonoxid und Methan betrachtet, und die Abscheidung der Oxidationsprodukte ermittelt. Die Versuchsergebnisse waren die Basis für die angeschlossene Modellierung der Strom-/Spannungs-Charakteristiken und der Reaktionskinetik. Darüber hinaus wurde der spezifische Energiebedarf der Ozonbildung und Oxidation betrachtet.

Die Oxidation von Stickstoffmonoxid wurde bei Gasgeschwindigkeiten zwischen 0,06 und 0,63 [m/s] und Feedkonzentration zwischen 10 und 500 [ppm] untersucht. In den Experimenten wurde bei einer mittleren Konzentration von 200 [ppm] ein Umsatz, abhängig vom Gasdurchsatz, zwischen 76 und 99 [%] an Stickstoffmonoxid erreicht. Die Abscheidung der Oxidationsprodukte lag demgegenüber, für die ausgewerteten Messpunkte im niedrigen Bereich zwischen 3 und 12 [%].

Verglichen zu den Versuchen mit Stickstoffmonoxid konnte Schwefeldioxid weniger effizient zu Schwefeltrioxid, beziehungsweise Schwefelsäure, oxidiert werden. Demgegenüber zeigt die Auswertung der Massenbilanz, dass die Abscheidung von Schwefeltrioxid und des Schwefelsäureaerosols, mit Abscheideraten um 75 [%] sehr effizient verläuft. Eine vollständige oder partielle Oxidation von Methan wurde nicht erreicht.

Eine Beschreibung der Strom-/Spannungs-Charakteristik der Bürstenelektrode ist nicht mit konventionellen Ansätzen möglich. Durch eine Erweiterung der Theorie der kleinen Ströme, und einer Parameteranpassung konnte eine gute Wiedergabe des Coronastromes erreicht werden.

Die Reaktion von Stickstoffmonoxid im Coronareaktor kann als Reaktion erster Ordnung angesehen werden. Mit abnehmender Eingangskonzentration und abnehmender Gasgeschwindigkeit verschiebt sich die Reaktion zusehends in eine Zwischenordnung zwischen erster und nullter Reaktionsordnung. Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante wurde für Stickstoffmonoxid bei konstanter

Gasgeschwindigkeit über die Versuchsreihen mit unterschiedlicher Feedkonzentration gemittelt. Durch die gemittelte Reaktionsgeschwindigkeitskonstante wird eine gute Wiedergabe des Konzentrationsverlaufs an Stickstoffmonoxid über dem Coronastrom bei unterschiedlichen Feedkonzentrationen erreicht. Die Auswertung ergibt, dass mit steigender Gasgeschwindigkeit im Reaktor auch die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante ansteigt.

Die Betrachtung des spezifischen Energiebedarfs zeigt, dass hohe Eingangskonzentration an Stickstoffmonoxid und hohe Gasdurchsätze sich vorteilhaft auf den spezifischen Energiebedarf auswirken. Die Abscheidung sehr geringer Konzentrationen erweist sich als energetisch ineffizient.

## 8 Literaturverzeichnis

- [1]. **Sjöholm, P. et al.** Gas Cleaning Technology. [Buchverf.] H. Goodfellow und E. Tähti. *Industrial Ventilation Design Guidebook*. San Diego : Academic Press, 2001.
- [2]. **White, Harry J.** *Entstaubung industrieller Gase mit Elektrofiltern*. Leipzig : VEB, 1969.
- [3]. **Parker, K. R.** *Applied Electrostatic Precipitation*. London : Chapman & Hall, 1997.
- [4]. **Chang, J., Lawless, P. A. und Yamamoto, T.** Corona Discharge Processes. *IEEE Transactions on Plasma Science*. 1991, Bd. 19, 6, S. 1152-1166.
- [5]. **Sommersacher, P.** Planung, Bau, Inbetriebnahme und Vermessung eines Coronareaktors. *Diplomarbeit*. Graz : Technische Universität Graz, 2010.
- [6]. **Riebel, U., Lübbert, C. und Lebedynskyy, S.** Elektroabscheider - es gibt noch viel zu tun. *Chemie Ingenieur Technik*. 2012, Bd. 84, 7, S. 1099-1113.
- [7]. **Peek, F. W.** *Dielectric phenomena in high voltage engineering*. New York : McGraw-Hill, 1920.
- [8]. **Hackam, R. und Akiyama, H.** Air pollution control by electrical discharges. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulations*. 2000, Bd. 7, 5, S. 654-683.
- [9]. **Yang, C. L., Chen, L.** Oxidation of nitric oxide in a two-stage chemical scrubber using dc corona discharge. *Journal of Hazardous Materials*. 2000, B80, S. 135-146.
- [10]. **Fritz, W. und Kern, H.** *Reinigung von Abgasen*. Würzburg : Vogel Verlag, 1992.
- [11]. **Schultes, M.** *Abgasreinigung*. Heidelberg : Springer, 1996.
- [12]. **Zapfel, W.** Grundlagen der reduzierenden Absorption von Stickoxiden. *Dissertation*. Graz : TU Graz, 1996.
- [13]. **Holleman, A. F. und Wiberg, N.** *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. Berlin : Walter de Gruyter, 2007.
- [14]. **Yehia, A., Abdel-Salam, M. und Mizuno, A.** On assessment of ozone generation in dc coronas. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2000, 33, S. 831-835.
- [15]. **Woisetschläger, D.** Simultane Abscheidung von SO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub>. *Diplomarbeit*. Graz : TU Graz, 2008.
- [16]. **Schwartz, S. E. und White, W. H.** Solubility Equilibria of the Nitrogen Oxides and Oxyacids in Dilute Aqueous Solutions. *Advances in Environmental Science and Engineering; Vol 4*. New York : s.n., 1981.
- [17]. **Roiron, J.** Lowering Nitric Acid Plant Investment with High Efficiency Absorption (HEA). *Nitrogen 88 - British Sulphur's 12th International Conference*. 1988.

- [18]. **Meckl, S. und Wunder, R.** Wässrige Systeme zur Absorption von SO<sub>2</sub>. *Chemie Ingenieur Technik*. 1991, Bd. 63, 1, S. 1-5.
- [19]. **E.C.E. Wurmitzer.** *High voltage Supply Module for Electrostatic Filters, User Manual*. Himmelberg : s.n., 2009.
- [20]. **Letonja, P., Friedrich, T. und Siebenhofer, M.** *DC-Corona Discharge; Application in Gas and Water Treatment*. Graz : 11th World Filtration Congress, 2012.
- [21]. **Magara, Y., Itoh, M. und Morioka, T.** Application of Ozone to Water Treatment and Power Consumption of Ozone Generating Systems. *Progress in Nuclear Energy*. 1995, Bd. 29, S. 175-182.
- [22]. **Siebenhofer, M.** *Reaktionstechnik II*. Graz : TU Graz (Institut für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik), 2009. Vorlesungsskript.
- [23]. **Levenspiel, O.** *Chemical Reaction Engineering*. Hoboken, New Jersey : John Wiley & Sons, 1999.
- [24]. **Atkins, P. W. und de Paula, J.** *Physikalische Chemie*. Weinheim : Wiley-VCH, 2006.
- [25]. **Rahel, J. et al.** Relaxing Phenomena in Negative Corona Discharge: New aspects. *Contrib. Plasma Physics*. 1999, Bd. 39, 6, S. 501-513.
- [26]. **Siebenhofer, M.** Aerosolabscheidung durch Ionisationswäscher. *Chemie Ingenieur Technik*. 1991, Bd. 63, 9, S. 904-910.
- [27]. **Lide, D. R. et al.** *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 84th Edition*. Boca Raton : CRC Press, Taylor & Francis Group, 2003.

## 9 Anhang

### 9.1 Stoffdaten

Name	Formel	Molekular- gewicht	Schmelz- punkt	Siede- punkt	Dichte, Gasdichte bei 25 [°C] und 101,325 [kPa]	
					Gas [g/L]	Flüssig [g/cm <sup>3</sup> ]
		[g/mol]	[°C]	[°C]		
Wasser	H <sub>2</sub> O	18,015	0	100		0,997
Stickstoff	N <sub>2</sub>	28,013	-210	-195,79	1,145	
Stickstoffmonoxid	NO	30,006	-161	-151	1,226	
Stickstoffdioxid	NO <sub>2</sub>	46,006	-11,2	21,1	1,88	
Distickstofftetroxid	N <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	92,011	-11,2	21,1	1,45	
Salpetersäure	HNO <sub>3</sub>	63,013	-41,6	83		1,55
Salpetrige Säure	HNO <sub>2</sub>	47,014	Existiert nur in Lösung			
Methan	CH <sub>4</sub>	16,043	-182,47	-161,48		
Schwefeldioxid	SO <sub>2</sub>	64,065	-75,5	-10,05	2,619	
Schwefeltrioxid	SO <sub>3</sub>	80,064	16,8	45		1,92
Schwefelsäure	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	98,080	10,31	337		1,8
Schweflige Säure	H <sub>2</sub> SO <sub>3</sub>	82,080	Existiert nur in Lösung			

## 9.2 Fallfilmdicke

$$H_K := 0.8\text{m} \quad \text{Fallfilmlänge}$$

$$d_i := 76\text{mm} \quad \text{Innendurchmesser Reaktor}$$

$$V_W := 60 \frac{1}{\text{hr}} \quad \text{Flüssigkeitsdurchsatz}$$

$$\nu_{\text{H}_2\text{O}} := 9.16 \cdot 10^{-7} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$$

$$g = 9.807 \frac{\text{m}}{\text{s}^2}$$

Fallfilmdicke nach Grassmann

$$f := \sqrt[3]{\frac{3 \cdot \nu_{\text{H}_2\text{O}} \cdot V_W}{g \cdot d_i \cdot \pi}}$$

$$f = 0.269 \text{mm}$$

Oberfläche und Stoffaustauschfläche des Fallfilms

$$O := (d_i - 2 \cdot f) \cdot \pi \cdot H_K$$

$$O = 0.19 \text{m}^2$$

### 9.3 Auslegung der Füllkörperkolonne

#### Spezifikation Füllkörper und Kolonne

$d_{RR} := 15\text{mm}$	Füllkörperdurchmesser		
$s_{RR} := 1.2\text{mm}$	Wandstärke		
$\epsilon_{RR} := 0.79$	Lückengrad		
$a_{RR} := 331 \frac{\text{m}^2}{\text{m}^3}$	Spezifische Oberfläche		
$D := 100\text{mm}$	Kolonnendurchmesser		
$h := 0.86\text{m}$	aktive Höhe		
$k_1 := 0.05$	$k_5 := 56$	$B_{\min} := 6.5 \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \cdot \text{hr}}$	min. Berieselungsdicht
$k_2 := 0.11$	$k_6 := 0.135$		
$k_3 := 0.3$	$k_7 := 0.021$	$B_{\max} := 70 \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \cdot \text{hr}}$	max. Berieselungsdicht
$k_4 := 0.115$			

#### Stoffdaten

$\rho_L := 1000 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Dichte Wasser
$\rho_G := 1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Gasdichte
$\mu_{\text{H}_2\text{O}} := 1 \text{ cP}$	Dynamische Viskosität in [Poise]

#### Betriebsdaten

$$V_L := 60 \frac{1}{\text{hr}}$$

$$A_W := D^2 \cdot \frac{\pi}{4} \qquad B := \frac{V_L}{A_W}$$

$$A_W = 7.854 \times 10^{-3} \text{ m}^2 \qquad B = 7.639 \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \cdot \text{hr}}$$

$$B_{\min} < B < B_{\max}$$

$$6.5 < 7.6 < 70$$

## Gasgeschwindigkeit

$$f_1 := 0.8 + 0.225 \sqrt[4]{\mu_{\text{H}_2\text{O}}} \quad v_{\text{eff}} := k_1 \sqrt{\frac{\rho_L}{\rho_G}} \left( 1 - k_2 \cdot f_1 \cdot \sqrt{B \cdot \frac{\text{hr}}{\text{m}}} \right)$$

$$f_1 = 1.025 \quad v_{\text{eff}} = 1.088 \frac{\text{m}}{\text{s}}$$

$$v_g := v_{\text{eff}} \left[ 1 + 7.5 \cdot \left( \frac{d_{\text{RR}}}{D} \right)^2 \right]$$

$$v_g = 1.272 \frac{\text{m}}{\text{s}}$$

$$V_{\text{Gmin}} := 1 \frac{\text{m}^3}{\text{hr}} \quad V_{\text{Gmax}} := 20 \frac{\text{m}^3}{\text{hr}}$$

$$v_{\text{min}} := \frac{V_{\text{Gmin}}}{A_W \cdot \epsilon_{\text{RR}}} \quad v_{\text{max}} := \frac{V_{\text{Gmax}}}{A_W \cdot \epsilon_{\text{RR}}}$$

$$v_{\text{min}} = 0.045 \frac{\text{m}}{\text{s}} \quad v_{\text{max}} = 0.895 \frac{\text{m}}{\text{s}}$$

## Druckverlust

$$n := 1.25 - 0.002 B \cdot \frac{\text{hr}}{\text{m}} \quad f_2 := 10 \cdot \left( k_6 + k_7 B \cdot \frac{\text{hr}}{\text{m}} \right)$$

$$n = 1.235 \quad f_2 = 2.008$$

$$\Delta p := k_5 \left( v_{\text{eff}}^2 \cdot 1000 \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^n \cdot f_2$$

$$\Delta p = 138.627 \text{ m mWs/m}$$

$$\Delta p_{\text{eff}} := \frac{\Delta p}{10} \cdot h$$

$$\Delta p_{\text{eff}} = 11.922 \text{ hPa}$$

## 9.4 Leitfähigkeitsberechnung

Die Leitfähigkeit bezieht sich auf die Ausgangslösung mit entionisiertem Wasser. Die Erhöhung der Leitfähigkeit durch Schwefelsäure oder Salpetersäure wird nicht berücksichtigt.

Ion	Molare Grenzleitfähigkeit [mS m <sup>2</sup> /mol]
Na <sup>+</sup>	5,01
K <sup>+</sup>	7,35
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	16
Cl <sup>-</sup>	7,63

Tabelle 9-1: Molare Grenzleitfähigkeit von Ionen in Wasser bei 298 [K], [24]

$$\Lambda_m^0 = \nu^+ \lambda^+ + \nu^- \lambda^- \quad 9-1$$

$\nu$  Anzahl der Kationen beziehungsweise Anionen pro Molekül

Substanz	Molare Grenzleitfähigkeit $\Lambda_m^0$ [S cm <sup>2</sup> /mol]
Natriumsulfat	260,2
Kaliumchlorid	150,3

Tabelle 9-2: Berechnete molare Grenzleitfähigkeit, nach Gleichung 9-1

Von SOMMERSACHER wurde eine Konzentration von 40 [g/l] an Natriumsulfat verwendet, bei ähnlicher spezifischer Leitfähigkeit entspricht dies 35 [g/l] Kaliumchlorid. Diese Konzentration wurde auf 15 [g/l] gesenkt.

$$\kappa = \Lambda_m^0 \cdot c \quad 9-2$$

Substanz	Konzentration	Konzentration	Spezifische Leitfähigkeit $\kappa$
	[g/l]	[mol/l]	[S/m]
Natriumsulfat, Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	40	0,2816	7,4
KCl	35	0,469	7
KCl	15	0,2	3

Tabelle 9-3: Spezifische Leitfähigkeit des Lösung, nach Gleichung 9-2

## 9.5 Korrektur Gasdurchsatz

Die Umrechnung des vom Rotameter abgelesenen Gasstromes erfolgt mit Gleichung 9-3. Die Gasgeschwindigkeit und Verweilzeit in Tabelle 9-4 sind auf den Coronareaktor bezogen, und nicht für die Wäscherkolonne gültig.

$$\dot{G}_{eff} [m^3/h] = 1,894 \cdot \dot{G}_{N,Rotameter} [Nm^3/h] \sqrt{\frac{273,15 + t_g [^\circ C]}{p_g [mbar]}} \quad 9-3$$

Angezeigt am Rotameter [Nm <sup>3</sup> /h]	Effektiver Gasstrom [m <sup>3</sup> /h]	Gasgeschwindigkeit Coronareaktor [m/s]	Verweilzeit Coronareaktor [s]
1	1,0	0,06	12,54
2	2,1	0,13	6,27
4	4,1	0,25	3,14
6	6,2	0,38	2,09
8	8,2	0,50	1,57
9,5	9,8	0,60	1,32
10	10,3	0,63	1,25

Tabelle 9-4: Gasdurchsatz, Gasgeschwindigkeit und Verweilzeit im Coronareaktor

## 9.6 Versuchsdatensätze

### 9.6.1 Ozonbildung

Gasdurchsatz: 9,5 [Nm <sup>3</sup> /h]		
U	I	Ozon
[kV]	[mA]	[ppm]
0	0	0
14	0,05	30
16	0,18	55
17	0,25	70
18	0,56	82
19	1,14	118
19,5	1,7	168
20	1,8	248
20,5	2	285

Gasdurchsatz: 8 [Nm <sup>3</sup> /h]		
U	I	Ozon
[kV]	[mA]	[ppm]
0	0	0
14	0,05	30
16	0,16	67
17	0,25	71
18	0,5	103
19	1,13	120
19,5	1,2	180
20	1,08	257
20,5	1,42	310

Gasdurchsatz: 6 [Nm <sup>3</sup> /h]		
U	I	Ozon
[kV]	[mA]	[ppm]
0	0	0
14	0,02	24
16	0,18	66
17	0,25	85
18	0,5	110
19	0,8	135
19,5	1,02	187
20	1,01	271
20,5	1,16	316

Gasdurchsatz: 4 [Nm <sup>3</sup> /h]		
U	I	Ozon
[kV]	[mA]	[ppm]
0	0	0
14	0,02	34
16	0,19	72
17	0,25	88
18	0,48	112
19	0,6	147
19,5	0,7	198
20	0,87	302
20,5	1,1	326

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h]		
U	I	Ozon
[kV]	[mA]	[ppm]
0	0	0
14	0,02	35
16	0,15	77
17	0,25	96
18	0,34	116
19	0,55	170
19,5	0,62	210
20	0,74	340
20,5	0,83	335

Gasdurchsatz: 1 [Nm <sup>3</sup> /h]		
U	I	Ozon
[kV]	[mA]	[ppm]
0	0	0
14	0,02	34
16	0,16	84
17	0,24	94
18	0,34	124
19	0,55	205
19,5	0,6	308
20	0,71	380
20,5	0,77	354

Tabelle 9-5: Ozonbildung im Coronareaktor bei unterschiedlichen Gasdurchsätzen

## 9.6.2 Oxidation von Schwefeldioxid

Gasstrom: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 812 [mg/Nm <sup>3</sup> ] SO <sub>2</sub>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[mg/Nm <sup>3</sup> ]	[mg/Nm <sup>3</sup> ]
0,0	0,00	772	732
16,0	0,12	760	720
18,0	0,26	720	680
19,0	0,48	695	640
19,5	0,56	620	582
20,0	0,66	570	533
20,5	0,83	556	510
20,8	0,99	533	472
21,0	1,20	503	440

Gasstrom: 3 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 801 [mg/Nm <sup>3</sup> ] SO <sub>2</sub>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[mg/Nm <sup>3</sup> ]	[mg/Nm <sup>3</sup> ]
0,0	0,00	786	772
14,0	0,15	783	763
16,0	0,22	773	739
18,0	0,40	733	702
19,0	0,55	691	658
20,0	0,70	660	610
20,5	0,80	646	593
20,7	0,95	647	562
21,0	1,06	641	556

Gasstrom: 4 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 420 [mg/Nm <sup>3</sup> ] SO <sub>2</sub>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[mg/Nm <sup>3</sup> ]	[mg/Nm <sup>3</sup> ]
0,0	0,00		402
18,0	0,25	396	386
18,5	0,38	382	369
19,5	0,57	370	340
20,0	0,71	346	306
20,5	0,86	337	280
20,7	0,90	347	270
21,0	1,06	341	263

Tabelle 9-6: Versuchsdatensätze zur SO<sub>2</sub> Oxidation

## 9.6.3 Oxidation von Stickstoffmonoxid

Gasdurchsatz: 6 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 185 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	185	
15,0	0,15	181	181
16,0	0,20	179	178
17,0	0,35	171	170
18,0	0,58	159	157
18,5	0,77	149	147
19,0	1,00	138	133
19,5	1,40	119	121
20,0	1,85	106	102
20,5	2,40	80	87
21,0	3,40	63	54
21,2	3,90	44	48

Gasdurchsatz: 4 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 200 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	200	200
15,0	0,17	193	191
16,0	0,22	189	186
17,0	0,32	182	178
18,0	0,58	163	159
18,5	0,78	149	144
19,0	0,99	136	132
19,5	1,30	119	111
20,0	1,70	100	96
20,5	2,20	78	70
21,0	2,80	57	54
21,2	3,34	46	41

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 209 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	209	208
15,0	0,15	199	197
16,0	0,23	188	188
17,0	0,35	177	173
18,0	0,58	151	145
18,5	0,74	130	123
19,0	0,95	105	103
19,5	1,16	88	84
20,0	1,50	67	59
20,5	1,90	40	41
21,0	2,30	22	27
21,2	2,55	15	22

Gasdurchsatz: 1 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 209 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	209	209
15,0	0,17	201	202
16,0	0,27	190	190
17,0	0,41	171	170
18,0	0,60	148	143
18,5	0,72	127	126
19,0	0,90	109	107
19,5	1,12	82	84
20,0	1,42	61	58
20,5	1,80	29	39
21,0	2,30	8	21
21,2	2,58	2	15

Tabelle 9-7: Versuchsreihe mit 200 [ppm] Stickstoffmonoxid

<b>Gasdurchsatz: 8 [Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 131 [ppm] NO</b>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	131	131
15,0	0,12	129	131
16,0	0,16	128	131
17,0	0,27	124	126
18,0	0,48	116	118
18,5	0,66	111	109
19,0	0,96	98	99
19,5	1,26	88	87
20,0	1,70	69	74
20,5	2,40	54	49
21,0	3,50	22	25

<b>Gasdurchsatz: 6 [Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 99 [ppm] NO</b>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	98	98
15,0	0,11	96	97
16,0	0,14	94	95
17,0	0,23	90	90
18,0	0,44	79	80
18,5	0,64	69	68
19,0	1,17	48	47
19,5	1,61	33	33
20,0	2,30	12	16
20,5	3,70	1	0

<b>Gasdurchsatz: 4 [Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 101 [ppm] NO</b>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	101	101
15,0	0,11	100	101
16,0	0,18	95	98
17,0	0,32	85	88
18,0	0,50	73	74
18,5	0,65	63	64
19,0	0,84	51	52
19,5	1,10	36	40
20,0	1,42	21	22
20,5	2,10	1	3
21,0	2,70	2	0

Tabelle 9-8: Versuchsreihe mit 100 [ppm] Stickstoffmonoxid

Gasdurchsatz: 10 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 50 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	50	50
14,0	0,04	49	49
16,0	0,10	47	48
17,0	0,17	46	46
18,0	0,33	41	41
19,0	0,71	30	31
19,5	1,07	22	21
20,0	1,65	10	12
20,5	2,85	2	2

Gasdurchsatz: 6 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 48 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	48	48
14,0	0,06	47	47
15,0	0,08	46	47
16,0	0,14	44	45
17,0	0,23	41	43
18,0	0,38	35	36
18,5	0,53	28	29
19,0	0,71	19	20
19,5	1,03	10	9
20,0	1,43	1	1
20,5	2,15	1	1
21,0	2,97	2	2

Gasdurchsatz: 4 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 49 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	48	48
14,0	0,06	48	48
16,0	0,13	44	45
17,0	0,22	41	41
18,0	0,36	29	32
18,5	0,48	24	23
19,0	0,68	12	14
19,5	0,89	1	2
20,0	1,30		1
20,5	1,78		2
21,0	2,44		4

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 53 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0		50	50
14,0	0,05	47	47
15,0	0,10	43	44
16,0	0,15	35	35
17,0	0,25	21	21
18,0	0,42	14	14
18,5	0,50	1	1
19,0	0,73	2	1
19,5	0,91		
20,0	1,17		
20,5	1,57		
21,0	2,03		

Tabelle 9-9: Versuchsreihe mit 50 [ppm] Stickstoffmonoxid

Gasdurchsatz: 10 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 12 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	12	12
14,0	0,03	11	12
16,0	0,10	10	10
17,0	0,17	8	9
18,0	0,32	4	5
18,5	0,47	1	2
19,0	0,69	1	1
19,5	1,13	0	1
20,0	1,67	1	1
20,5	2,98	2	2

Gasdurchsatz: 4 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 11 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0		11	10
14,0	0,05	10	10
16,0	0,13	7	7
17,0	0,22	3	3
18,0	0,26	1	1
18,5	0,36	1	1
19,0	0,48	1	1
19,5	0,69		
20,0	0,95		
20,5	1,28		

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 11 [ppm] NO			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0		11	11
14,0	0,07	9	10
15,0	0,12	7	10
16,0	0,19	4	7
17,0	0,28	2	5
17,5	0,34	1	3
18,0	0,41	1	1
18,5	0,52	1	1
19,0	0,63	1	1
19,5	0,76	2	2
20,0	1,00	3	2
20,5	1,33	4	3
21,0	1,73	5	4

Tabelle 9-10: Versuchsreihe mit 10 [ppm] Stickstoffmonoxid

<b>Gasdurchsatz: 2 [Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 404 [ppm] NO</b>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	404	404
15,0	0,15	383	369
16,0	0,22	376	359
17,0	0,36	361	349
18,0	0,53	339	315
18,5	0,70	319	301
19,0	0,90	294	274
19,5	1,10	269	255
20,0	1,40	243	224
20,5	1,80	216	200
21,0	2,24	181	174
21,2	2,45	172	169
21,5	2,81	152	154
21,8	3,14	138	145

<b>Gasdurchsatz: 2 [Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 309 [ppm] NO</b>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	309	309
15,0	0,13	298	288
16,0	0,17	296	286
17,0	0,27	284	272
18,0	0,40	262	250
18,5	0,52	248	236
19,0	0,64	229	215
19,5	0,87	202	189
20,0	1,12	171	162
20,5	1,55	140	128
21,0	2,20	95	92
21,2	2,50	85	81
21,5	2,92	57	65

<b>Gasdurchsatz: 1 [Nm<sup>3</sup>/h], Feed: 506 [ppm] NO</b>			
U	I	Mitte	Kopf
[kV]	[mA]	[ppm]	[ppm]
0,0	0,00	506	505
15,0	0,14	483	447
16,0	0,20	475	437
17,0	0,35	448	414
18,0	0,50	427	384
18,5	0,55	404	369
19,0	0,75	379	342
19,5	0,94	350	323
20,0	1,20	309	288
20,5	1,50	272	255
21,0	1,94	229	220
21,5	2,55	188	185
21,8	3,38	133	165

Tabelle 9-11: Versuche mit höheren Konzentrationen an Stickstoffmonoxid bei 2 [Nm<sup>3</sup>/h] und 1 [Nm<sup>3</sup>/h]

## 9.7 Spezifischer Energiebedarf

Gasdurchsatz: 9,5 m <sup>3</sup> /h				
U	I	Ozon	P	Energiebedarf
[kV]	[mA]	[mg/h]	[W]	[Wh/g]
14	0,05	627,7	0,7	1,12
16	0,18	1150,7	2,88	2,50
17	0,25	1464,6	4,25	2,90
18	0,56	1715,7	10,08	5,88
19	1,14	2468,9	21,66	8,77
19,5	1,7	3515,0	33,15	9,43
20	1,8	5188,8	36	6,94
20,5	2	5963,0	41	6,88

Gasdurchsatz: 8 m <sup>3</sup> /h				
U	I	Ozon	P	Energiebedarf
[kV]	[mA]	[mg/h]	[W]	[Wh/g]
14	0,05	528,7	0,7	1,32
16	0,16	1180,9	2,56	2,17
17	0,25	1251,4	4,25	3,40
18	0,5	1815,3	9	4,96
19	1,13	2115,0	21,47	10,15
19,5	1,2	3172,4	23,4	7,38
20	1,08	4529,5	21,6	4,77
20,5	1,42	5463,7	29,11	5,33

Gasdurchsatz: 6 m <sup>3</sup> /h				
U	I	Ozon	P	Energiebedarf
[kV]	[mA]	[mg/h]	[W]	[Wh/g]
14	0,02	317,1	0,28	0,88
16	0,18	872,1	2,88	3,30
17	0,25	1123,1	4,25	3,78
18	0,5	1453,4	9	6,19
19	0,8	1783,8	15,2	8,52
19,5	1,02	2470,9	19,89	8,05
20	1,01	3580,8	20,2	5,64
20,5	1,16	4175,4	23,78	5,70

Gasdurchsatz: 4 m <sup>3</sup> /h				
U	I	Ozon	P	Energiebedarf
[kV]	[mA]	[mg/h]	[W]	[Wh/g]
14	0,02	299,3	0,28	0,94
16	0,19	633,7	3,04	4,80
17	0,25	774,5	4,25	5,49
18	0,48	985,8	8,64	8,76
19	0,6	1293,8	11,4	8,81
19,5	0,7	1742,7	13,65	7,83
20	0,87	2658,1	17,4	6,55
20,5	1,1	2869,3	22,55	7,86

Gasdurchsatz: 2 m <sup>3</sup> /h				
U	I	Ozon	P	Energiebedarf
[kV]	[mA]	[mg/h]	[W]	[Wh/g]
14	0,02	153,7	0,28	1,82
16	0,15	338,0	2,4	7,10
17	0,25	421,5	4,25	10,08
18	0,34	509,3	6,12	12,02
19	0,55	746,3	10,45	14,00
19,5	0,62	921,9	12,09	13,11
20	0,74	1492,6	14,8	9,92
20,5	0,83	1470,7	17,015	11,57

Gasdurchsatz: 1 m <sup>3</sup> /h				
U	I	Ozon	P	Energiebedarf
[kV]	[mA]	[mg/h]	[W]	[Wh/g]
14	0,02	72,8	0,28	3,85
16	0,16	179,9	2,56	14,23
17	0,24	201,3	4,08	20,27
18	0,34	265,5	6,12	23,05
19	0,55	439,0	10,45	23,80
19,5	0,6	659,6	11,7	17,74
20	0,71	813,8	14,2	17,45
20,5	0,77	758,1	15,785	20,82

Tabelle 9-12: Spezifischer Energiebedarf der Ozonbildung

Gasdurchsatz: 6 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 185 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
15,0	0,15	2,25	0,0330	68,09
16,0	0,20	3,20	0,0496	64,56
17,0	0,35	5,95	0,1157	51,45
18,0	0,58	10,44	0,2148	48,61
18,5	0,77	14,25	0,2974	47,90
19,0	1,00	19,00	0,3883	48,94
19,5	1,40	27,30	0,5452	50,07
20,0	1,85	37,00	0,6526	56,69
20,5	2,40	49,20	0,8674	56,72
21,0	3,40	71,40	1,0078	70,84
21,2	3,90	82,68	1,1648	70,98

Gasdurchsatz: 4 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 200 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
15,0	0,17	2,55	0,0386	66,04
16,0	0,22	3,52	0,0607	58,01
17,0	0,32	5,44	0,0993	54,79
18,0	0,58	10,44	0,2041	51,15
18,5	0,78	14,43	0,2813	51,29
19,0	0,99	18,81	0,3530	53,28
19,5	1,30	25,35	0,4468	56,73
20,0	1,70	34,00	0,5516	61,64
20,5	2,20	45,10	0,6730	67,02
21,0	2,80	58,80	0,7888	74,54
21,2	3,34	70,81	0,8495	83,35

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 209 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
15,0	0,15	2,25	0,0274	81,98
16,0	0,23	3,68	0,0576	63,85
17,0	0,35	5,95	0,0878	67,74
18,0	0,58	10,44	0,1592	65,58
18,5	0,74	13,69	0,2168	63,14
19,0	0,95	18,05	0,2855	63,23
19,5	1,16	22,62	0,3321	68,11
20,0	1,50	30,00	0,3898	76,97
20,5	1,90	38,95	0,4639	83,97
21,0	2,30	48,30	0,5133	94,10
21,2	2,55	54,06	0,5325	101,53

Gasdurchsatz: 1 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 209 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
15,0	0,17	2,55	0,0107	238,07
16,0	0,27	4,32	0,0254	169,82
17,0	0,41	6,97	0,0509	136,99
18,0	0,60	10,80	0,0817	132,24
18,5	0,72	13,32	0,1098	121,32
19,0	0,90	17,10	0,1339	127,72
19,5	1,12	21,84	0,1700	128,44
20,0	1,42	28,40	0,1982	143,32
20,5	1,80	36,90	0,2410	153,11
21,0	2,30	48,30	0,2691	179,48
21,2	2,58	54,70	0,2772	197,35

Tabelle 9-13: Spezifischer Energiebedarf der NO Oxidation, Versuchsserie mit 200 [ppm] NO

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 404 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
15,0	0,15	2,25	0,0562	40,01
16,0	0,22	3,52	0,0750	46,95
17,0	0,36	6,12	0,1151	53,15
18,0	0,53	9,54	0,1741	54,81
18,5	0,70	12,95	0,2276	56,90
19,0	0,90	17,10	0,2946	58,05
19,5	1,10	21,45	0,3615	59,34
20,0	1,40	28,00	0,4311	64,95
20,5	1,80	36,90	0,5034	73,30
21,0	2,24	47,04	0,5971	78,77
21,2	2,45	51,94	0,6212	83,61
21,5	2,81	60,42	0,6748	89,53
21,8	3,14	68,45	0,7123	96,10

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 309 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
15,0	0,13	1,95	0,0295	66,20
16,0	0,17	2,72	0,0348	78,14
17,0	0,27	4,59	0,0669	68,56
18,0	0,40	7,20	0,1259	57,21
18,5	0,52	9,62	0,1633	58,89
19,0	0,64	12,16	0,2142	56,76
19,5	0,87	16,97	0,2865	59,21
20,0	1,12	22,40	0,3695	60,62
20,5	1,55	31,78	0,4525	70,21
21,0	2,20	46,20	0,5730	80,62
21,2	2,50	53,00	0,5998	88,36
21,5	2,92	62,78	0,6748	93,03

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 53 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
14,0	0,05	0,70	0,0161	43,57
15,0	0,10	1,50	0,0268	56,02
16,0	0,15	2,40	0,0482	49,79
17,0	0,25	4,25	0,0857	49,60
18,0	0,42	7,56	0,1044	72,39
18,5	0,50	9,25	0,1392	66,43
19,0	0,73	13,87	0,1366	101,56

Gasdurchsatz: 2 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 11 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
14,0	0,07	0,98	0,0054	182,99
15,0	0,12	1,80	0,0107	168,05
16,0	0,19	3,04	0,0187	162,18
17,0	0,28	4,76	0,0241	197,51
17,5	0,34	5,95	0,0268	222,20
18,0	0,41	7,38	0,0268	275,60

Tabelle 9-14: Spezifischer Energiebedarf der NO Oxidation, Versuchsserie mit 2 [Nm<sup>3</sup>/h]

Gasdurchsatz: 8 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 131 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
0,0	0,00	0,00		
15,0	0,12	1,80	0,0220	81,68
16,0	0,16	2,56	0,0331	77,44
17,0	0,27	4,59	0,0771	59,51
18,0	0,48	8,64	0,1653	52,27
18,5	0,66	12,21	0,2204	55,40
19,0	0,96	18,24	0,3636	50,16
19,5	1,26	24,57	0,4738	51,85
20,0	1,70	34,00	0,6832	49,77
20,5	2,40	49,20	0,8485	57,99
21,0	3,50	73,50	1,2011	61,19

Gasdurchsatz: 6 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 99 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
0,0	0,00	0,00		
15,0	0,11	1,65	0,0248	66,58
16,0	0,14	2,24	0,0413	54,23
17,0	0,23	3,91	0,0743	52,59
18,0	0,44	7,92	0,1652	47,94
18,5	0,64	11,84	0,2478	47,77
19,0	1,17	22,23	0,4213	52,76
19,5	1,61	31,40	0,5452	57,58
20,0	2,30	46,00	0,7187	64,00
20,5	3,70	75,85	0,8096	93,69

Gasdurchsatz: 4 [Nm <sup>3</sup> /h], Feed: 101 [ppm] NO				
U	I	P	Abbau NO	spez. Energie
[kV]	[mA]	[W]	[g/h]	[Wh/g]
0,0	0,00	0,00		
15,0	0,11	1,65	0,0055	299,12
16,0	0,18	2,88	0,0331	87,02
17,0	0,32	5,44	0,0883	61,64
18,0	0,50	9,00	0,1545	58,27
18,5	0,65	12,03	0,2096	57,37
19,0	0,84	15,96	0,2758	57,87
19,5	1,10	21,45	0,3586	59,82
20,0	1,42	28,40	0,4413	64,36
20,5	2,10	43,05	0,5516	78,04
21,0	2,70	56,70	0,5461	103,83

Tabelle 9-15: Spezifischer Energiebedarf der NO Oxidation, Versuchsserie mit 100 [ppm] NO

## 9.8 Fitkurven und Reaktionskinetische Auswertung

	Vgas	c	A	B	C	D	
	[Nm <sup>3</sup> /h]	[ppm]					
<b>NO</b>	10	10	4,573	3,448	8,038	3,447	
	4	10	5,967	5,74	5,967	5,739	
	2	10	5,874	5,405	5,874	5,386	
	10	50	25,85	0,8497	25,85	0,8495	
	6	50	29,74	1,362	22,13	1,361	
	4	50	28,77	1,92	24,72	1,885	
	2	50	25,24	3,729	29,39	3,431	
	8	100	73,03	0,3994	64,52	0,3994	
	6	100	52,55	0,7278	51,81	0,7278	
	4	100	55,54	1,06	55,54	1,009	
	6	200	95,46	0,3398	95,46	0,3398	
	4	200	104,3	0,44	102,7	0,4317	
	2	200	113,6	0,8181	111	0,8181	
	1	200	101,7	0,9336	131,2	0,919	
	2	300	280,5	0,5432	40,98	0,5432	
	2	400	270,3	0,4418	136,7	0,2199	
	1	500	321,8	0,4859	191,1	0,297	
	<b>SO2</b>	2	270	252,9	0,4411	23,03	0,000048
		3	275	140,6	0,5373	140	0,000014

Tabelle 9-16: Kurvenfitparameter

	Vgas	c	k	k1	k2	
	[Nm <sup>3</sup> /h]	[ppm]	[mmol/mA*h]	[mmol/mA*h]	[mmol/mA*h]	
<b>NO</b>	10	10	19,01	19,01	19	
	4	10	11,55	11,55	11,55	
	2	10	5,3	5,3	5,29	
	10	50	19,52	19,518	19,523	
	6	50	18,08	18,08	18,07	
	4	50	16,71	16,86	16,55	
	2	50	16,7	17,47	16,07	
	8	100	19,14	19,14	19,14	
	6	100	20,16	20,16	20,16	
	4	100	18,87	18,94	18,8	
	6	200	17,72	17,81	17,62	
	4	200	17,16	17,38	16,9	
	2	200	16,52	16,53	16,5	
	1	200	8,59	8,59	8,58	
	2	300	15,41	16,26	0,04	
	2	400	13,14	18,6	1E-11	
	1	500	7,5	13,13	2E-11	
	<b>SO2</b>	2	270	10,09	11,16	1,214E-03
		3	275	9,5	20,44	5,325E-04

Tabelle 9-17: Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten der einzelnen Versuchsreihen