

Elektrische technieken voor gasreiniging; een evaluatie van toekomstige toepasbaarheid

Referentienummer 92-062
Dossiernummer 112326-23392
Datum maart 1993
P

Auteurs:

E. Mot ¹⁾ (projectleider)
P.H. de Haan ²⁾
W.J.L. Jansen ³⁾
H.J.G. Kok ¹⁾
W.R. Rutgers ³⁾

Trefwoorden:

- elektrogranulaire filtering
- (gepulste) elektrische ontladingen
- elektronenbestraling
- diëlektrische verwarming
- UV-straling

Bestemd voor:

Holec Projects B.V.
Hoogovens Technical Services B.V.
NOVEM B.V.
Philips Lighting B.V.
EnergieNed

- ¹⁾ Afd. Afgas- en Verbrandingstechnologie, IMET-TNO, Apeldoorn
²⁾ Kunststoffen- en Rubber Instituut TNO, Delft
³⁾ KEMA, Arnhem

Colofon

Deze studie is tot stand gekomen door samenwerking van TNO en N.V. KEMA met de volgende instellingen en bedrijven:

- HOLEC Projects B.V., Hengelo;
- Hoogovens Technical Services B.V., IJmuiden;
- NOVEM B.V.¹⁾ (contract nr. 51540/3210), Utrecht;
- Philips Lighting B.V., Eindhoven;
- EnergieNed, Arnhem.

De bedrijven en instellingen leverden bijdragen in de vorm van financiële ondersteuning en eigen metingen.

Dit rapport kan worden besteld door overmaken van een bedrag van f 95,- excl. BTW en verzendkosten op postbankrekening nr. 416269 van IMET-TNO, Apeldoorn tel. 055 - 49 35 92, onder vermelding van rapport no. 92-062.

¹⁾ Stimuleringsregeling Milieutechnologie van het ministerie van VROM, beheerd door NOVEM

Summary

In this study an evaluation is presented of the (future) applicability of electrical techniques for flue (gas) cleaning. In this context attention is given to five main systems, namely:

- electro granular filtering;
- electrical discharges;
- electron radiation;
- dielectric heating;
- UV radiation.

Each of these techniques is discussed in some detail; hence, actually there are some ten to twenty sub-techniques which in general can be applied either on a small or on a large scale.

In *electro granular filtering* (EGF) a granular filter (in general aluminium oxyde) is used; the filter efficiency is increased for submicron particles by the electrostatic charging of the grain material. A further improvement is effectuated by guiding the contaminated gas through a corona discharge. By specific selection of the discharge – in particular by applying a positive streamer corona – it is moreover possible to decompose other substances, such as SO₂, NO_x and hydrocarbons, through the generation of radicals. This combined effect opens the possibility to develop a cleaning method for (flue) gases which is cheaper than the total costs of partial conventional methods of gas cleaning. The system is in an advanced stage of (laboratory) development. In this context from the various types of grain beds available – fixed, moving, fluidised and sintered – the latter one appears to be most promising.

From the substudy on (*pulsed*) *electrical discharges* it appears that both corona and silent discharges can be used for destruction of many gases, amongst them SO₂ and NO_x, and corona discharges also for the removal of particles. Moreover, pulsed corona can be applied at temperatures over 400 °C approximately; with EGF this temperature constitutes a boundary, since at higher temperatures no DC field can be maintained. Reliable data on costs are not yet available; however, also in this case the impression is that this technology can be competitive in comparison with the total costs of ESP¹⁾ and existing physico-chemical techniques.

Electron radiation is mainly attractive for large mass flows, say over 20,000 m₀³ of gas per hour. This is due to the minimal possible dimensions of the required electron accelerators. In principle, the method is suitable for abating NO_x, SO₂, VOCs, and particles. At present, system studies show that the corona technology is probably cheaper; both technologies may however be cheaper than the total costs of conventional partial cleaning technologies.

Dielectric (flue) gas cleaning seems somewhat less favourable than the techniques discussed before. Its characteristic is, however, that it is often applied in so-called '*market-niches*': very specific situations where they appear to be THE solution for the particular problem. An example in this context is the development of clean diesel engines where the soot in the exhaust filter is periodically burnt by dielectric heating.

¹⁾ electro static precipitation

Ultraviolet radiation, finally, comprises two methods, viz. the direct and the indirect method. In the direct method, the entire (flue) gas stream is treated; this requires very much energy. The indirect method implies the production of ozone, which is added to the flue gas in a small percentage. The difference in costs between the direct and the indirect method amounts to a factor of 1000. In practice, depending on the degree of pollution of the gas and the required degree of purification, a mix of both methods will be applied. UV also works very well at low concentrations of pollutants and therefore is particularly suitable for some types of odour abatement.

On the basis of the preceding considerations the most prospective options can be selected. It is obvious that in this way only a very general picture is shown, but when evaluating a young class of technologies, like the present one, such a review is highly relevant (table 1).

Table 1 Prospective electrical techniques for gas cleaning

Technique	Components to be abated	Remarks
Electro granular filtering (EGF) with sintered ceramic filter	particles	- for small and large scale applications - little peripheric equipment required - size < 50% of ESP¹⁾ - costs comparable with ESP
EGF with sintered ceramic filter, in combination with pulsed corona discharges	particles, NO _x , SO ₂ (PCBs, PAHs, HCs)	- probably cheaper than the total costs of partial conventional abatement methods
Electrical discharges (pulsed corona)	NO _x , SO ₂ , Hg-vapour, particles	- <i>large scale</i> cheaper than total costs of partial conventional abatement methods
	VOC, H ₂ S, odour, xylene etc; particles	- <i>small scale</i> probably sooner industrially available than large scale flue gas cleaning
Electron radiation	NO _x , SO ₂ , VOCs	- large scale only, > 20,000 m ³ /hour
Dielectric heating		- applicable in specific situations (e.g. the after burning of soot in exhaust filters of diesel engines) - often too expensive
UV radiation	odour, HHCs, aromatics	- mix of direct and indirect (O₃ production) - generally too expensive for other applications than odour abatement²⁾

PCBs: Polychlorinated biphenyls; PAHs: Polyaromatic hydrocarbons; HCs: Hydrocarbons; VOCs: Volatile Organic Compounds; HHCs: Halogenated hydrocarbons

¹⁾ Electrostatic Precipitation (of particles); conventional method for dust removal in power plants

²⁾ Unless the combination with catalyst materials is effective

The prospects of the technologies evaluated in this study, however, obtain only real significance when compared with existing non-electrical techniques. In the context of this study some attention was paid to these techniques as well. However, due to a lack of data on costs of electrical techniques an exact comparison is still impossible.

Finally in this study attention is paid to the problem of market introduction of this new class of equipment.

Samenvatting

In deze studie wordt een evaluatie gegeven van de (toekomstige) toepasbaarheid van elektrische technieken voor (rook)gasreiniging. Daarbij is aandacht besteed aan vijf hoofdsystemen, namelijk:

- elektrogranulaire filtering;
- elektrische ontladingen;
- elektronenbestraling;
- diëlektrische verwarming;
- UV-straling

Elk van deze technieken wordt in enig detail besproken; daardoor is in feite sprake van 10 à 20 sub-technieken, die veelal zowel klein- als grootschalig kunnen worden toegepast.

Bij *elektrogranulaire filtering* (EGF) wordt gebruik gemaakt van een korrelbed-filter (meestal aluminiumoxyde), waarbij de filterefficiëntie wordt verhoogd voor submicrondeeltjes door het korrelmateriaal elektrostatich op te laden.

Een tweede mogelijkheid betreft het elektrostatich opladen van het korrelmateriaal. Door specifieke keuze van de ontlading – met name door gebruik te maken van een positieve streamer corona – is het bovendien mogelijk andere stoffen, zoals SO₂, NO_x en koolwaterstoffen via de vorming van radicalen tot ontleding te brengen. Met name hierdoor kan een reinigingsmethode ontstaan die goedkoper is dan de somkosten van partiële conventionele reinigingsmethoden. Het systeem bevindt zich in een vergevorderd stadium van (laboratorium)ontwikkeling. Daarbij is van de diverse uitvoeringsvormen van het korrelbed – vast, bewegend, gefluïdiseerd en gesinterd – de laatste optie het meestbelovend.

Uit de deelstudie over (*gepulste*) *elektrische ontladingen* blijkt dat (DC) corona en stille ontladingen kunnen worden toegepast voor de vernietiging van vele gasen, waaronder SO₂ en NO_x. Corona-ontladingen zijn daarbij ook toepasbaar voor het verwijderen van deeltjes. Bovendien is **gepulste** corona bruikbaar bij temperaturen boven ca. 400 °C; bij EGF is dat een (globale) grens, omdat daarboven geen DC-veld meer in stand kan worden gehouden.

Harde kostencijfers ontbreken vooralsnog; ook hier bestaat echter de indruk dat deze techniek in principe kan concurreren met de somkosten van ESP en bestaande chemisch/fysische technieken.

Elektronenbestraling is vooral aantrekkelijk bij grote debieten, bijvoorbeeld > 20.000 m³/u, dit in verband met de minimaal mogelijke afmetingen van de benodigde elektronenversnellers. De methode is in principe geschikt voor het bestrijden van NO_x, SO₂, VOC's en deeltjes. Systeemstudies wijzen op dit moment uit, dat de coronatechniek wellicht goedkoper is; beide technieken zijn echter goedkoper dan de somkosten van conventionele partiële reinigingstechnieken.

Diëlektrische (rook)gasreiniging komt in deze studie wat minder kansrijk naar voren dan de eerder besproken technieken.

Het kenmerk van diëlektrische technieken is echter dat ze vaak toepassing vinden in *marktniches*: zeer specifieke situaties, waarin ze DE oplossing voor het betreffende probleem blijken te vormen. Een voorbeeld daarvan betreft de ontwikkeling van schone dieselmotoren, waarbij roetafzetting in het uitlaatfilter periodiek wordt naverbrand door diëlektrische verhitting.

Ultraviolette straling, tenslotte, kan op twee manieren toegepast worden, nl. direct en indirect. Bij de directe methode wordt de gehele (rook)gasstroom behandeld, wat zeer veel energie kost. Bij de indirecte wordt ozon gemaakt, die in een

bepaalde verdunning aan het rookgas wordt toegevoegd. Het verschil in kosten tussen de directe en de indirecte methode is een factor 1000. In de praktijk zal men, naar gelang de verontreinigingsgraad van het gas en de gewenste mate van zuivering, werken met een mix van beide methoden. UV is ook goed werkzaam bij zeer lage concentraties van verontreinigingen en leent zich daardoor onder andere goed voor sommige typen van geurbestrijding.

Op basis van het voorgaande kunnen nu de 'beste kanshebbers' worden geselecteerd. Het is duidelijk dat dit slechts een globaal beeld geeft van wat werkelijk speelt en nog kan gaan spelen. Maar bij de evaluatie van een nog zo jonge klasse van technieken is een dergelijk overzicht toch relevant (tabel 1).

Tabel 1 Kansrijke elektrische technieken van gasreiniging

Techniek	Af te vangen componenten	Opmerkingen
Elektrogranulaire filtering (EGF) met gesinterd keramisch filter	deeltjes	- klein- en grootschalig bruikbaar - relatief weinig randapparatuur nodig - omvang < 50% van ESP¹⁾ - kosten vergelijkbaar met ESP
EGF met gesinterd keramisch filter, gecombineerd met gepulste corona-ontladingen	deeltjes NO _x , SO ₂ (PCB, PAK, KW)	- vermoedelijk goedkoper dan de som van partiële conventionele bestrijdingsmethoden
Elektrische ontladingen (gepulste corona)	NO _x , SO ₂ , Hg-damp, deeltjes	- <i>grootschalig</i> goedkoper dan som partiële bestrijdingsmethoden
	VOS, H ₂ S, geur, xyleen etc.; deeltjes	- <i>kleinschalig</i> (industrieel) waarschijnlijk eerder op de markt dan grootschalige rookgasreiniging
Elektronenbestraling	NO _x , SO ₂ , VOC's	- alleen grootschalig, > 20.000 m³/uur
Diëlektrische verwarming		- in specifieke situaties toepasbaar (bijvoorbeeld naverbranden van roet in uitlaatfilters van dieselmotoren!) - vaak te kostbaar
UV-straling	geur, HKW's, aromaten	- mix van direct en indirect (via O₃-productie) - voor andere dan geurcomponenten vaak te kostbaar²⁾

PCB: Polychloor biphenylen; PAK: Polyaromatische koolwaterstoffen; KW: Koolwaterstoffen; VOS: Vluchtige Organische Stoffen; HKW: Halogeen Koolwaterstoffen

¹⁾ Elektrostatistische Precipitatie (van deeltjes); conventionele methode voor stofafvangen bij elektriciteitscentrales

²⁾ Tenzij de combinatie met katalysatormaterialen effectief is

De 'kansen' van de hier genoemde technieken krijgen echter pas werkelijke betekenis wanneer ze worden afgewogen tegen bestaande niet-elektrische technieken. In het kader van deze studie is hier eveneens enige aandacht aan geschonken. Met name door het ontbreken van kostencijfers over elektrische technieken is een harde vergelijking echter niet mogelijk.

Tenslotte wordt in de studie aandacht geschonken aan de problematiek van de marktintroductie van betreffende apparatuur.

Inhoudsopgave

	Colofon	2
	Summary	3
	Samenvatting	5
1	Inleiding	11
1.1	Doel van de studie	11
1.2	Opzet van de studie	12
1.3	Referenties	12
2	Elektrogranulaire filtering	13
2.1	Uitvoeringsvormen	14
2.1.1	Vaste korrelbedfilters	15
2.1.2	Bewegende korrelbedfilters	18
2.1.3	Gefluïdiseerde korrelbedfilters	21
2.1.4	Gesinterd elektrogranulair filter	24
2.1.5	Theorie en praktijk	25
2.2	Technische evaluatie	27
2.3	Economische aspecten	29
2.3.1	Roosterloos bewegend korrelbedfilter	29
2.3.2	Bewegend geëlektrificeerd korrelbedfilter	29
2.3.3	Vast geëlektrificeerd korrelbedfilter	30
2.3.4	Gesinterd elektrogranulair filter	30
2.3.5	Voorlopig overzicht bedrijfskosten	32
2.4	Referenties	33
3	(Gepulste) elektrische ontladingen	37
3.1	Corona ontladingen	39
3.2	Stille ontladingen	46
3.3	Glimontladingen	50
3.4	Modellering	51
3.5	Systeemstudies	52
3.6	Literatuur	52
3.6.1	Algemeen	52
3.6.2	Corona ontladingen	53
3.6.3	Stille ontladingen	54
3.6.4	Glimontladingen	55
4	Elektronenbestraling	57
4.1	Literatuur	63

Inhoudsopgave (vervolg)

5	Diëlektrische (rook)gasreiniging	65
5.1	Diëlektrisch reinigen van gassen	65
5.1.1	Het verwijderen van SO ₂ en NO _x uit rookgassen	66
5.1.2	Terugwinnen van zwavel na rookgasreiniging	68
5.1.3	Verwijderen en afvangen	69
5.1.4	Drogen van rookgassen	71
5.1.5	Regeneratie van filters	71
5.2	Kostenschatting	72
5.3	Literatuur	73
6	UV-Straling	75
6.1	UV-stralers	75
6.1.1	Ultraviolette straling	75
6.1.2	Elektrische voorzieningen en opgenomen vermogen	76
6.1.3	Bedrijfsomstandigheden en UV-rendement	77
6.1.4	Veiligheidsaspecten	78
6.2	Chemische effecten van UV-straling	78
6.2.1	Benodigde golflengte	78
6.2.2	Benodigde intensiteit	80
6.2.3	Waterstofdonor	80
6.3	Productie van ozon	80
6.4	Chemische oxydatie met ozon alléén	81
6.5	UV-bestraling van ozon bevattende afgassen (UV/ozon)	83
6.6	Perspectieven voor UV/ozon-installaties	84
6.6.1	Procesafgassen met organische verontreinigingen (onder andere geur)	84
6.6.2	Rookgassen met stikstof- en zwaveloxyden	86
6.7	Referenties	87
7	Evaluatie	89
7.1	Vergelijking elektrische technieken onderling	91
7.2	Vergelijking elektrische technieken met niet-elektrische	93
7.2.1	Deeltjes	94
7.2.2	Geur	94
7.2.3	Zwavedioxyde	95
7.2.4	Stikstofoxyden	97
7.3	Behoeften aan verder onderzoek	98
7.3.1	Elektrogranulaire filtering	98
7.3.2	(Gepulste) elektrische ontladingen	99
7.3.3	Elektronenbestraling	100
7.3.4	Diëlektrische (rook)gasreiniging	101
7.3.5	UV-straling	101
7.4	De weg naar implementatie	102
7.5	Referenties	104

Inhoudsopgave (vervolg)

8	Conclusies en aanbevelingen.....	105
8.1	Conclusies.....	105
8.2	Aanbevelingen	106
9	Verantwoording	107

*Bijlage Monografieën Informatiesysteem Technieken,
Compartiment Lucht – Inhoudsopgave*

1 Inleiding

In het kader van het Nederlandse milieubeleid neemt de bestrijding van luchtverontreiniging een belangrijke plaats in. De wet- en regelgeving op dit gebied is de laatste jaren aanzienlijk verscherpt, ook internationaal.

Deze situatie heeft geleid tot een versnelde opkomst van nieuwe technieken op dit gebied. De ontwikkeling daarvan is thans nog in volle gang, en zal zich naar verwachting nog geruime tijd voortzetten.

Daarbij ligt het voor de hand dat lang niet alle technieken, die in dit stadium worden onderzocht, de eindstreep van de praktische toepassing zullen halen. Veel voorgestelde technieken zullen uiteindelijk afvallen, omdat ze te duur zijn, te veel energie verbruiken, onvoldoende betrouwbaar zijn, de gewenste componenten in onvoldoende mate afvangen, etc.

In dit verband nemen *elektrische* technieken een bijzondere plaats in. En wel vooral, omdat zij nieuwer zijn dan de chemische en mechanische.

De blijkt bijvoorbeeld uit de monografie 'Informatiesysteem Milieutechnieken, Compartiment Lucht' [1], waarin van de 13 beschreven methoden slechts één elektrische wordt genoemd, namelijk 'elektrofiltratie' (= elektrostatisch stof-afvangen).

Door deze betrekkelijke nieuwheid is het onderzoeksveld op dit gebied sterker in beweging. Het gevolg daarvan is, dat er in dit stadium juist over deze klasse van technieken veel onduidelijkheid bestaat aangaande de potentiële betekenis voor gasreiniging. De enige bewezen elektrische techniek is in feite voornoemde elektrofiltratie; alle andere bevinden zich nog in laboratorium- of pilotfase.

1.1 Doel van de studie

Op grond van de voorgaande overwegingen zal in deze studie worden nagegaan, welke elektrische methoden voor reiniging van rookgassen en andere gassen zodanig veelbelovend zijn, dat onderzoek naar industriële toepassing ter hand moet worden genomen.

Daarbij is het duidelijk, dat een oordeel over een methode slechts gegeven kan worden door hem te vergelijken met een andere methode, die (ongeveer) tot hetzelfde resultaat leidt. Dit impliceert de behoefte aan een aantal referentiemethoden, waar de merites globaal van bekend zijn, en die als vergelijkingsbasis kunnen dienen.

Deze methoden zijn onder andere in [1] beschreven; ter oriëntatie is de inhoudsopgave van [1] als *bijlage* in deze studie opgenomen.

1.2 Opzet van de studie

In eerste instantie worden in deze studie de basistechnieken, waar het hier om gaat, in enig detail beschreven. Met name wordt in *hoofdstuk 2* ingegaan op de mogelijkheden om met elektrogranulaire filtering (EGF) deeltjes af te vangen; kiest men bij de EGF-techniek voor een combinatie van een gelijkspanningsveld met een gepulste corona, dan kunnen bovendien chemische omzettingen plaatsvinden. In *hoofdstuk 3* worden (gepulste) elektrische ontladingen behandeld; *hoofdstuk 4* geeft een beeld van de (thans in Nederland nog niet onderzochte) techniek van elektronenbestraling. In *hoofdstuk 5* wordt een evaluatie van diëlektrische technieken gegeven en in *hoofdstuk 6*, tenslotte, wordt UV-straling behandeld.

Een evaluatie van de resultaten van de in hoofdstuk 2 t/m 6 besproken technieken wordt in *hoofdstuk 7* gepresenteerd. Daarbij is ook een beschrijving gegeven van de niet-elektrische technieken, waar (ongeveer) hetzelfde mee kan worden bereikt.

In *hoofdstuk 8*, tenslotte, worden de resultaten van deze studie samengevat in de vorm van een aantal conclusies en aanbevelingen.

1.3 Referenties

- [1] H. Bartelds et al., Monografieën Informatiesysteem Technieken; Compartiment Lucht. A.C.F. Wiering, J. Joziasse (ed.), RIVM/IMET-TNO, rapportnummer 736101007, herziene uitgave, augustus 1992.

2 Elektrogranulaire filtering

P.H. de Haan, KRI-TNO

Een korrelbedfilter is een filtersysteem voor het afvangen van deeltjes uit een gas of vloeistof. Het systeem is geschikt voor gebruik onder extreme omstandigheden. Het betreft een bed van inert korrelmateriaal waardoor het te reinigen gas of de te reinigen vloeistof wordt geleid. Onder invloed van verschillende mechanismen worden de stofdeeltjes in het medium afgezet op de korrels en in het filterbed vastgehouden.

Een korrelbedfilter wordt al vaak toegepast voor vloeistoffiltratie. Door de vrije keuze van het korrelmateriaal kan een systeem worden ontworpen voor extreme condities, zoals hoge temperatuur (bijvoorbeeld vloeibaar metaal), corrosief medium (bijvoorbeeld etsbaden), en dergelijke. Verder kunnen de karakteristieke grootheden van het systeem (filterefficiëntie en drukval) worden ingesteld door de juiste keuze van de korrelafmetingen en de dikte van de korrelaag.

Voor gasfiltratie is het toepassen van een korrelbedfilter nog wat minder gebruikelijk. Doordat de depositie van stofdeeltjes uit het gas geheel gebaseerd is op mechanische afvangstmechanismen gaat een hoge filterefficiëntie gepaard met een hoge drukval of een laag doorstroomdebiet. Er zijn enige toepassingen waarbij dat geen bezwaar hoeft te zijn, met name die waarbij het gas onder hoge druk staat, bijvoorbeeld wervelbedverbranding onder hoge druk (Pressurized Fluidized Bed Combustion, PFBC).

De inzetbaarheid van het korrelbedfilter kan worden verbreed door gebruik te maken van elektrostatische krachten. Hierdoor wordt met name de filterefficiëntie voor submicrondeeltjes verhoogd. In de eerste plaats kunnen de stofdeeltjes in de gasstroom van een elektrische lading worden voorzien door het gas door een corona-ontlading te leiden, analoog aan de oplading van de deeltjes in een elektrostatische precipitator (ESP of elektrofilter). Tengevolge van spiegelbeeldkrachten worden de opgeladen deeltjes met een hogere efficiëntie op de korrels van het filterbed afgezet. Een tweede mogelijkheid voor het toepassen van elektrostatica is het elektrisch opladen van het korrelmateriaal. Door het aanleggen van een elektrisch veld over de korrelaag worden de korrels gepolariseerd en ontstaat er rond de korrels een sterk inhomogeen elektrisch veld. **Geladen** stofdeeltjes worden tengevolge van Coulombkrachten op de korrels afgezet en **ongeladen** deeltjes tengevolge van diëlektroforetische krachten. Het eerstgenoemde mechanisme is vooral van belang voor kleine deeltjes ($<10\ \mu\text{m}$) en het tweede mechanisme voor grotere ($>10\ \mu\text{m}$). In de praktijk wordt over het algemeen zowel gebruik gemaakt van een corona-ontlading voor het opladen van de stofdeeltjes als van een elektrisch veld om het korrelmateriaal te polariseren.

Door toepassing van deze technieken kan, in combinatie met een beter vangstrendement ook het drukverlies over het filtersysteem worden verlaagd in vergelijking tot niet-elektrische filtersystemen. Een optimalisatie tussen filterefficiëntie en drukval maakt het toepassen van een geëlektrificeerd korrelbedfilter algemeen bruikbaar.

Korrelbedfilters zijn in principe uitsluitend geschikt voor het afvangen van deeltjes (vast en vloeibaar). Zonder gebruik van elektrostatica is een vangstrendement van ca. 90-95% haalbaar voor microndeeltjes. Door het toepassen van elektrostatica kan het vangstrendement worden verbeterd tot 95 à 99,9% voor micron- en

submicrondeeltjes. Het uiteindelijk te bereiken vangstrendement hangt uiteraard af van de uitvoeringsvorm.

In het volgende zal kort worden ingegaan op de verschillende uitvoeringsvormen van een geëlektrificeerd korrelbedfilter (Electrified Granular Bed filter, EGB-filter).

2.1 Uitvoeringsvormen

Los van het al dan niet toepassen van elektrostata bestaan er drie typen korrelbedfilters, namelijk vaste, bewegende en gefluidiseerde.

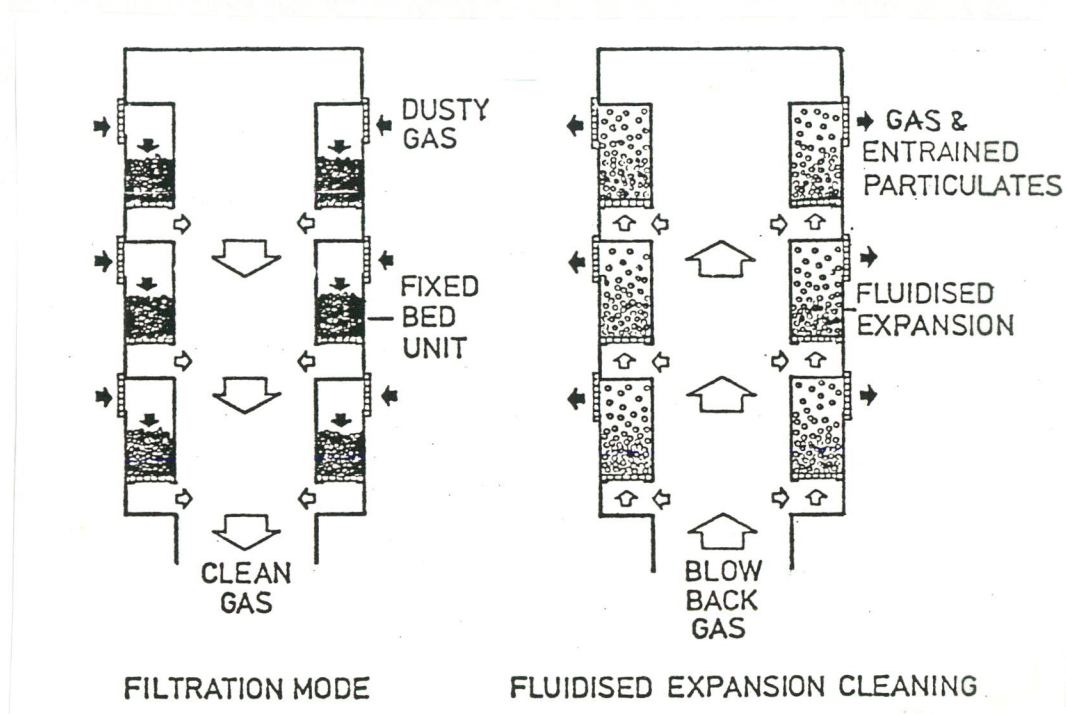
Alvorens in te gaan op de constructieve en technologische aspecten van deze typen zullen eerst enige gegevens met betrekking tot de benodigde hoogspanning worden gegeven. Een corona-eenheid voor het opladen van stofdeeltjes kan het best vergeleken worden met een elektrostatische precipitator (ESP). Maar terwijl bij een ESP ca. 125 m² collectoroppervlak benodigd is om 1 m³/s aan rookgas te reinigen is voor het opladen van de stofdeeltjes slechts 10 m² elektrode-oppervlak benodigd. Bij een ESP is de verblijftijd van het gas in het systeem ca. 10-20 s, terwijl bij een corona-oplaadeenheid de verblijftijd slechts 0,2-0,5 s behoeft te zijn. Dientengevolge is ook het benodigde elektrische vermogen voor een corona-oplaadeenheid naar verhouding beperkt. Onder normale condities (atmosferische druk, temperatuur tot 300 °C) kan gebruik worden gemaakt van gelijkspanning. De gebruikte spanning bedraagt ca. 25 kV en de corona-stroom is ca. 25 mA bij een gasstroom van 10.000 m³/u. Het benodigde elektrische vermogen voor de corona-oplaadeenheid is derhalve 0,6 kW voor een gasstroom van 10000 m³/u. Indien het gas onder atmosferische druk bij hogere temperatuur (>400 °C) moet worden gereinigd, kan vermoedelijk geen gelijkspanning meer worden toegepast. Onder die omstandigheden is een stabiele corona-ontlading voor het opladen van de stofdeeltjes mogelijk door het toepassen van een gepulste hoogspanning [38]. Het betreft dan hoogspanningspulsen met een piekhoogte van 25 kV, pulslengte van 10 à 100 µs, pulsstijgtijd van 1 µs, en een pulsherhalingsfrequentie van 100 à 1000 Hz. Het benodigde gemiddelde vermogen om de stofdeeltjes in een gasstroom van 10.000 m³/u op te laden bedraagt dan eveneens 0,5 à 1 kW.

Voor het polariseren van de filterkorrels wordt meestal gebruik gemaakt van gelijkspanning. Het toepassen van 50 Hz wisselspanning is een enkele keer in de literatuur gerapporteerd. Het elektrisch veld dat benodigd is om een significante verbetering van het vangstrendement te bereiken bedraagt ca. 500 kV/m. De benodigde hoogspanning hangt derhalve af van de korrelaagdikte. Meestal is de hoogspanningselektrode halverwege de korrelaag aangebracht. In de praktijk is de laagdikte 2 à 10 cm, zodat de benodigde hoogspanning 5 à 25 kV is. In optimale omstandigheden (dat wil zeggen ideaal isolerende korrels) zou er geen elektrische energie worden verbruikt. Maar in de praktijk heeft het korrelmateriaal een eindige elektrische weerstand. De lekstroom wordt bepaald door het specifieke oppervlak van het filter, de korrelaagdikte en de specifieke weerstand van het korrelmateriaal. Voor een gasstroom van 10.000 m³/u zal deze lekstroom 10 à 100 mA bedragen. Het elektrische vermogen voor het polariseren van het filtermateriaal is derhalve ca. 1 kW voor een gasstroom van 10.000 m³/u.

2.1.1 Vaste korrelbedfilters

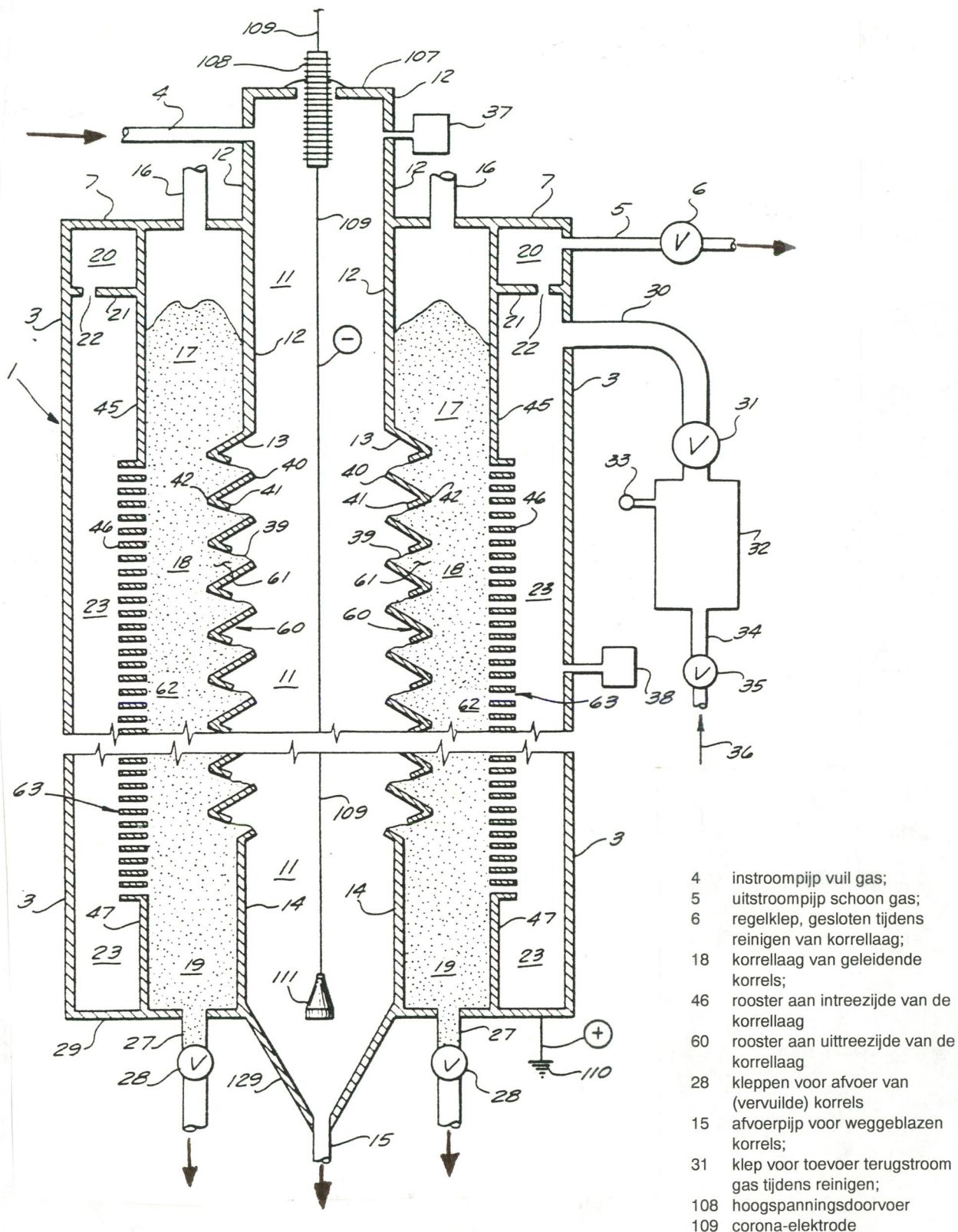
Er zijn twee uitvoeringsvormen van de vaste korrelbedfilters.

Bij vaste korrelbedfilters, waarbij de korrelaag op een horizontaal rooster ligt, wordt de vervuilde gasstroom van bovenaf door het filter geleid. Het stof wordt voornamelijk in de bovenste laag van het filter afgezet en vaak ontstaat er een filterkoek. De korrelaag kan worden gereinigd door een reinigingsgasstroom van onderaf door het filter te leiden met een dusdanig hoge snelheid, dat het filterbed wordt geïnduseerd en het afgezette stof, geagglomereerd, in de reinigingsgasstroom wordt afgevoerd [1, 2, 3] (figuur 2.1). De reinigingsgasstroom, met een veel kleiner volume dan de primaire gasstroom, wordt vervolgens in een cycloon of doekfilter ontdaan van het stof.

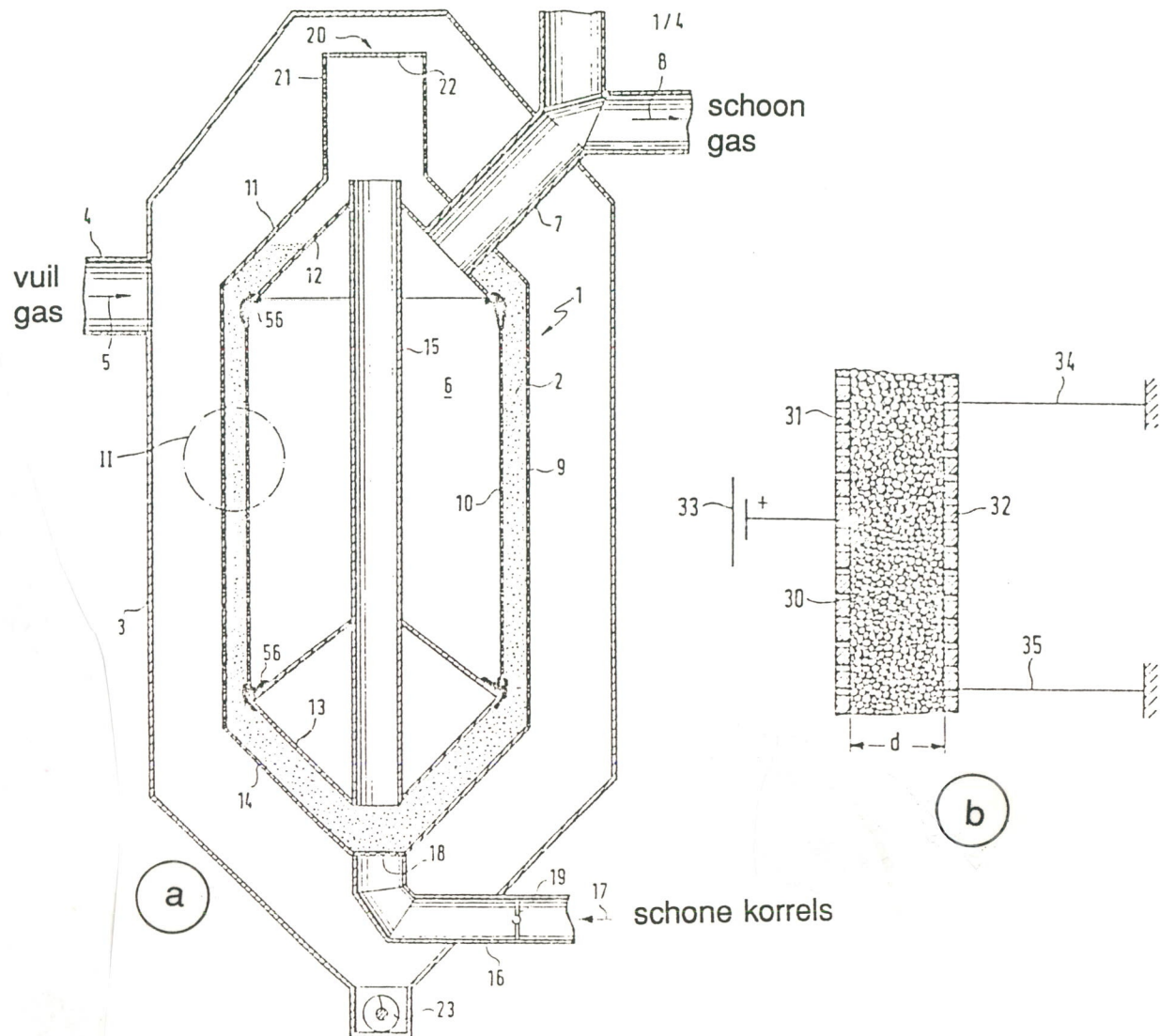


Figuur 2.1 Schematische weergave van een vast korrelbedfilter (zonder elektrostatische) in de filtratie mode (links) en de reinigingsmode (rechts) [36]

Daarnaast worden vaste filters toegepast waarbij de korrelaag is opgesloten tussen twee verticale roosters, het zogenaamde panelbedfilter. Vaak heeft het rooster stroomopwaarts een open-jaloezieën-structuur. Ook in dit geval wordt het stof vooral in de buitenste laag van het filterbed afgezet. Het korrelmateriaal wordt gereinigd door een tegengasstroom, waarbij de buitenste laag van het korrelmateriaal kan worden afgevoerd door het open rooster. Bij dit filter kan corona-oplading van het stof vóór het filter worden toegepast, waarbij het korrelmateriaal dan geleidend is [4] (figuur 2.2). Ook polarisatie van het korrelmateriaal wordt toegepast [5, 6]. In plaats van een reinigingsgasstroom wordt het korrelmateriaal ook wel geheel verwijderd en extern gereinigd [6, 7] (figuur 2.3).



Figuur 2.2 Vast korrelbed (zogenaamd panelbed) met corona-oplading van stofdeeltjes. De korrels zijn elektrisch geleidend. Het filter wordt periodiek gereinigd met een tegenstroom [4]



Figuur 2.3 Vast korrelbed met polarisatie van het korrelmateriaal (zie detail in figuur 2.3b). Het filtermateriaal wordt periodiek afgevoerd en extern gereinigd [6]

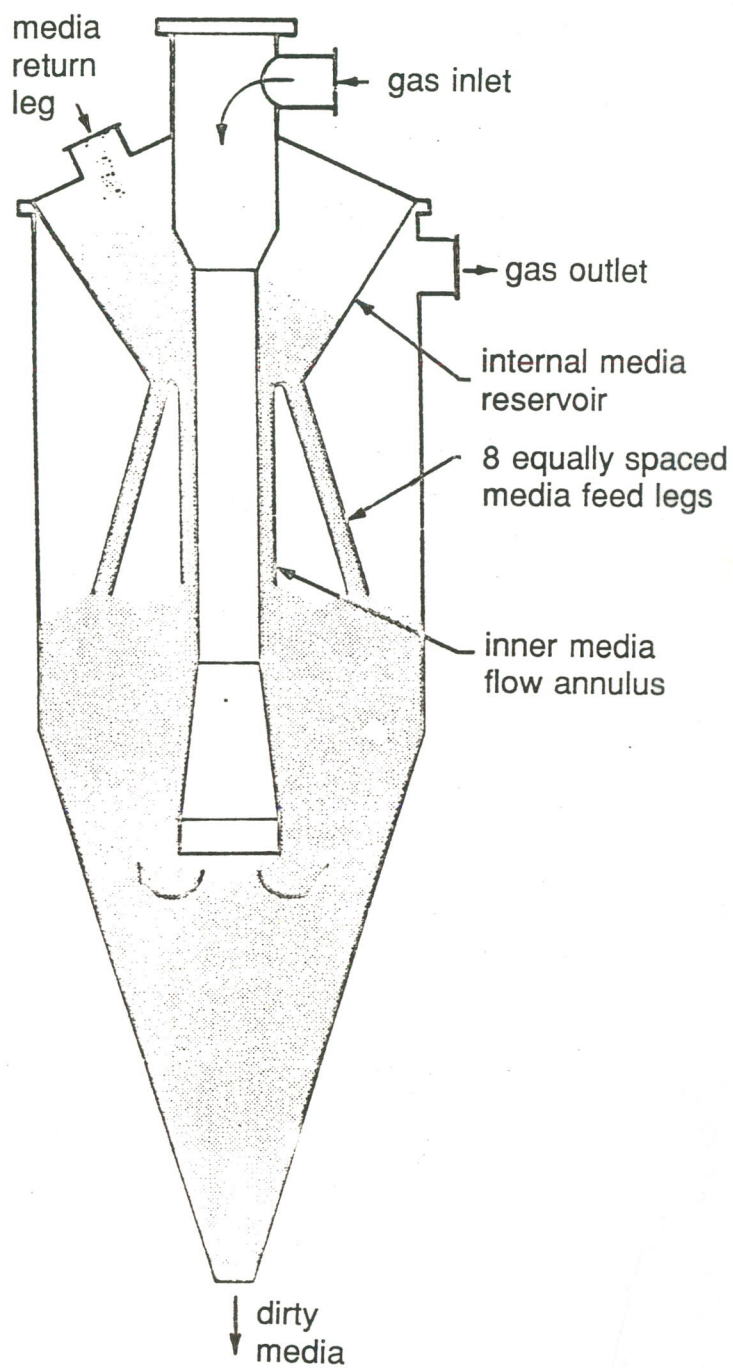
Met vaste korrelbedfilters kan een hoge filterefficiëntie worden bereikt (>99% voor microneeltjes en ca. 99% voor submicroneeltjes), afhankelijk van de korrelafmetingen (typisch: 0,5 à 5 mm) en de korrelaagdikte (typisch: 2 à 20 cm). De snelheid waarmee het gas door het filter wordt geleid is tamelijk hoog (typisch: 5 à 50 cm/s), met als gevolg een hoge drukval (typisch: 0,5 à 5 kPa). Het benodigde mechanische vermogen om dit drukverlies te overwinnen bedraagt voor een gasstroom van 10.000 m³/u derhalve 1 à 10 kW, hetgeen vergelijkbaar is met het benodigde elektrische vermogen. De filterefficiëntie van deze systemen kan nadelig worden beïnvloed wanneer het korrelmateriaal niet voldoende gereinigd wordt. Er treedt dan accumulatie van stof op het korrelmateriaal op met als mogelijk gevolg een vergrote penetratie van stof door het filter. Er dient nog opgemerkt te worden dat vaste korrelbedfilters discontinu werken. Hiermee wordt bedoeld dat de filterfase en de korrelreinigingsfase gescheiden zijn.

2.1.2 Bewegende korrelbedfilters

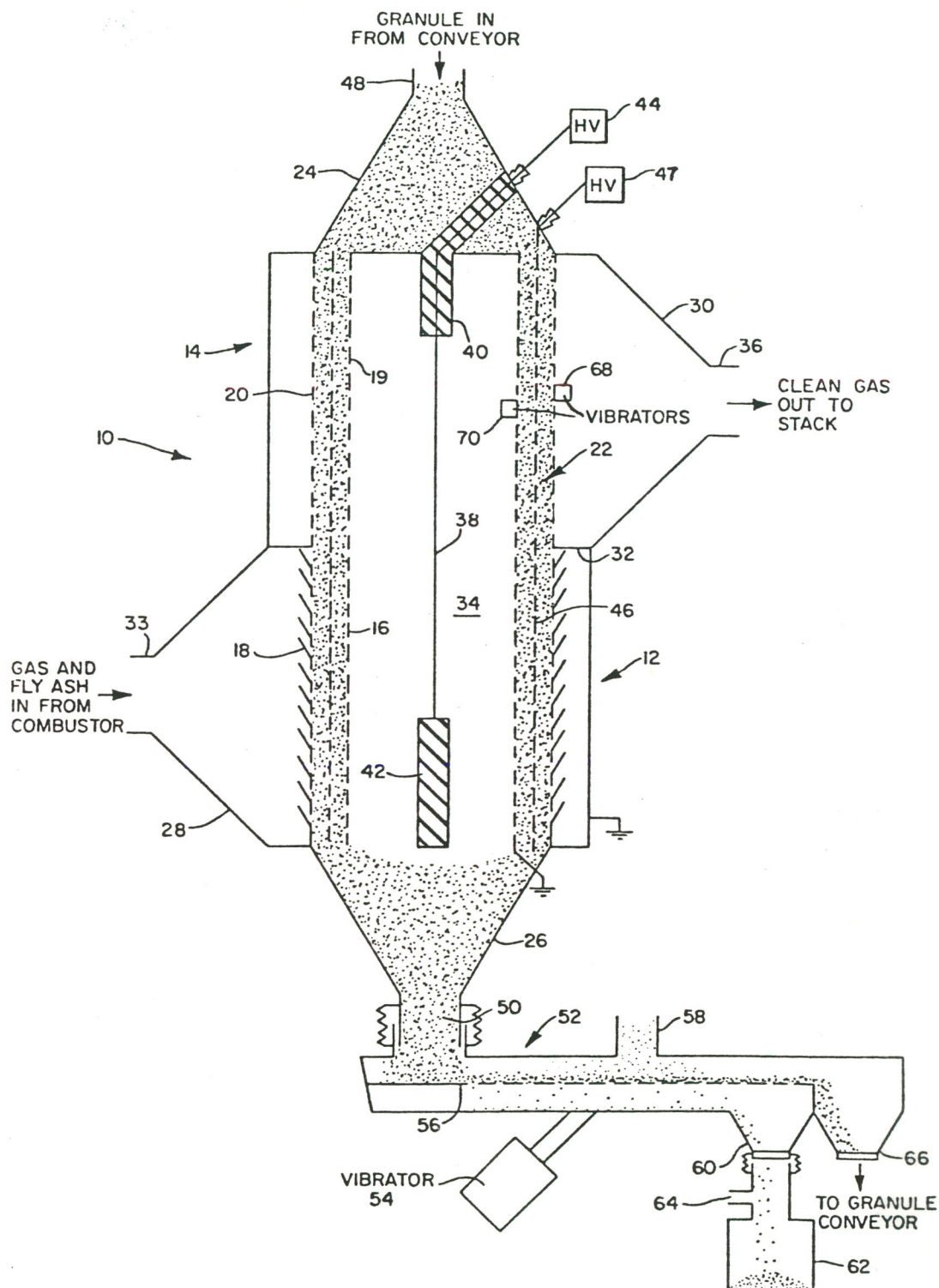
Van bewegende korrelbedfilters bestaan eveneens twee soorten. Bij roosterloze filters wordt een dik korrelbed continu door een cilinder geleid. Het vervuilde gas wordt van bovenaf centraal ingevoerd en de gereinigde gasstroom wordt, ook aan de bovenkant, buitenom afgevoerd [8, 9] (figuur 2.4). Bij dit type filter ontstaat er geen filterkoek, maar wordt het stof door het korrelmateriaal gemengd. Opladen van het stof met een corona-ontlading vóór het filter wordt overwogen [3]. Door de grote dikte van de laag is de drukval over het algemeen tamelijk hoog. De gassnelheid moet zo laag zijn dat er geen fluïdisatie optreedt van de korrels aan het oppervlak waar het gas het korrelbed verlaat.

Bij het tweede soort bewegend korrelbedfilter wordt het korrelmateriaal continu tussen twee verticale roosters geleid. De gasstroom is loodrecht op de bewegingsrichting van het korrelmateriaal. Om dichtslaan van het rooster stroomopwaarts te voorkomen zijn de afmetingen van de openingen in het rooster (jaloezieën) en de verdeling van de korreldiameter zodanig op elkaar afgestemd dat een deel van het korrelmateriaal (10 à 20%) door het rooster verdwijnt. Het vervuilde korrelmateriaal wordt extern gereinigd en teruggevoerd. Zowel polarisatie van het filtermateriaal door een hoogspanningsrooster in de korrelaag als corona-oplading van het stof worden toegepast. Ondanks het elektrische veld en de corona-oplading hebben bewegende korrelbedfilters over het algemeen een betrekkelijk lage filterefficiëntie (95 à 99%). Dit wordt veroorzaakt door loslaten van de afgevangen stofdeeltjes tengevolge van het langs elkaar bewegen van de filterkorrels [10 t/m 15, 35] (figuur 2.5 en 2.6).

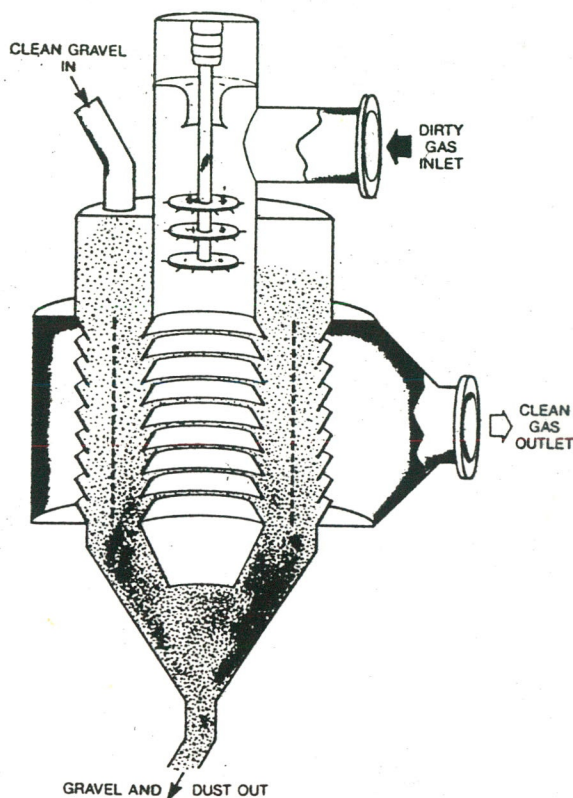
De karakteristieke grootheden van korrelmateriaal, gassnelheid, laagdikte (tot ca. 20 cm) en dergelijke komen overeen met die van vaste korrelbedfilters, evenals de specificaties van de elektrische componenten. In tegenstelling tot de vaste korrelbedfilters zijn de bewegende korrelbedfilters continue systemen. Het vervuilde korrelmateriaal wordt tijdens bedrijf voortdurend aan het filterbed onttrokken, extern gereinigd en weer in het filter teruggevoerd.



Figuur 2.4 Roosterloos bewegend korrelbedfilter (zonder elektrostatica) [8]



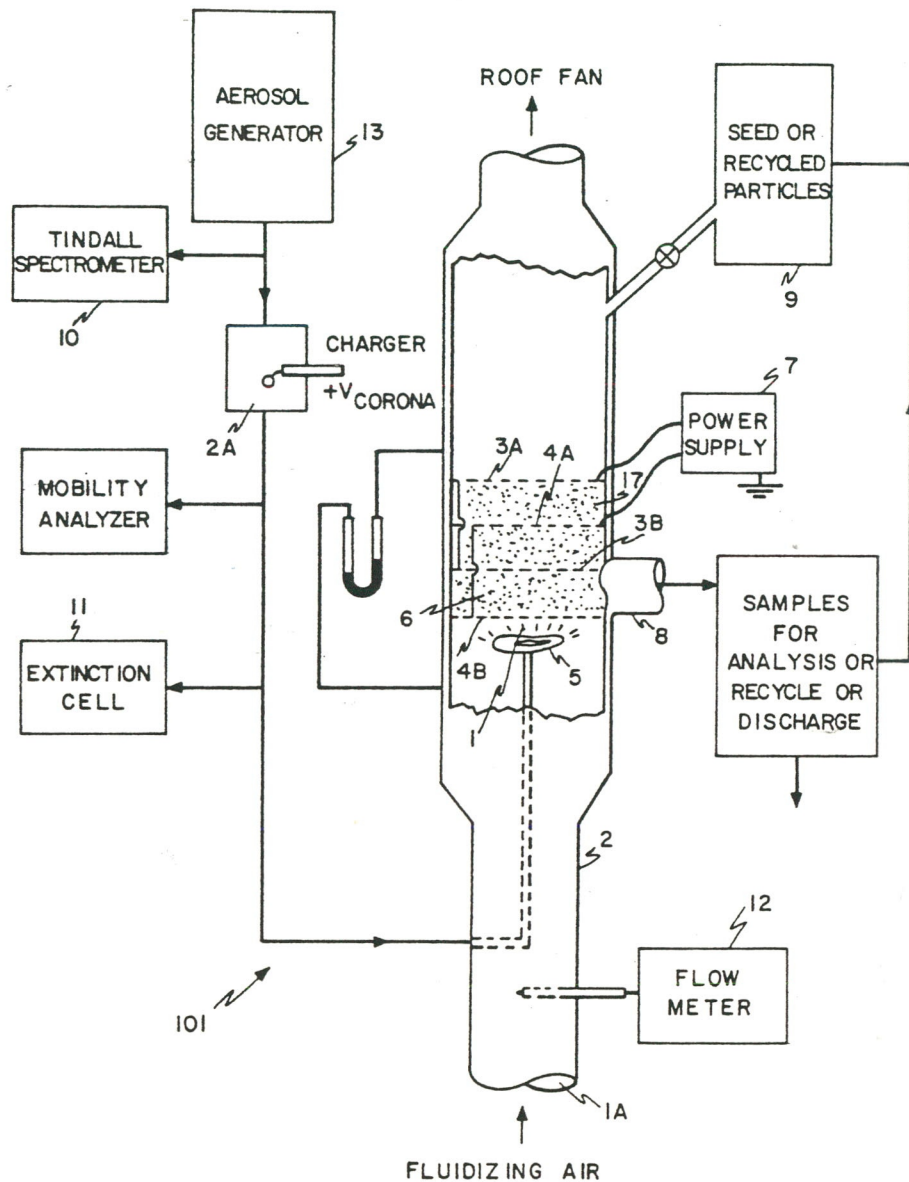
Figuur 2.5 Geëlektrificeerd bewegend korrelbedfilter. Corona-oplading van het stof door middel van een corona-elektrode in het midden. Polarisation van het korrelmateriaal met een elektrode in de korrel laag [14]



Figuur 2.6 Schematische weergave van een praktische uitvoering van het geëlektrificeerd bewegend korrelbedfilter. Corona-oplading door middel van schijven in de aanvoer van het rookgas [5]

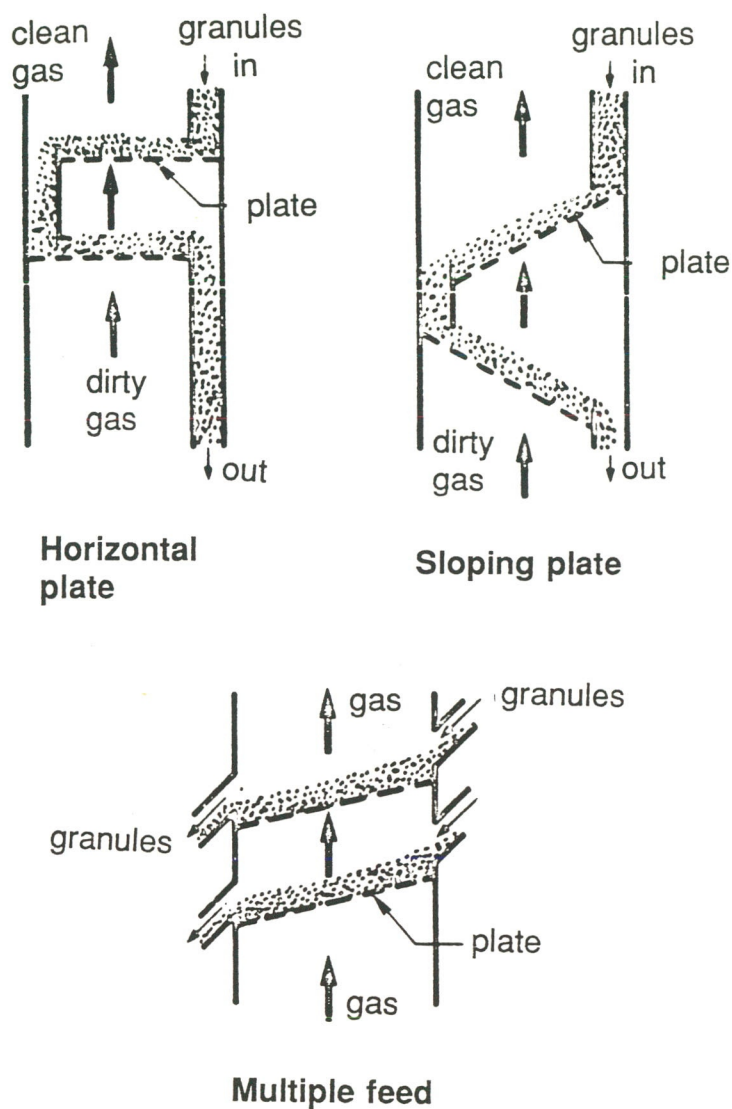
2.1.3 Gefluidiseerde korrelbedfilters

Bij gefluidiseerde korrelbedfilters rust een korrel laag van enkele cm's dikte op een horizontaal gaas of gasverdeelplaat. De snelheid van de vuile gasstroom, die van onderaf toestroomt, is nu zo hoog, dat het korrelbed fluidiseert of expandeert. Over het algemeen wordt de vorming van gasbellen zoveel mogelijk tegengegaan door het toepassen van een elektrostatisch of magnetisch veld [16, 17, 18]. Naast polarisatie van het filtermateriaal kan corona-oplading van de stofdeeltjes worden toegepast (figuur 2.7). Het is de opzet dat het stof door het gehele filter heen op de korrels wordt afgezet. In de praktijk blijkt het moeilijk om een stabiel geëxpandeerd bed te handhaven en de vorming van gasbellen te voorkomen [19]. Als dat lukt, dan is een hoge efficiëntie haalbaar (99%).



Figuur 2.7 Elektrostatisch gefluidiseerd korrelbedfilter. Corona-oplading vóór de korrelaag en polarisatie van het korrelmateriaal [17]

Een speciaal type gefluidiseerd korrelbedfilter is de 'Dry Plate Scrubber', waarbij de gassnelheid zo hoog is dat de stofdeeltjes op de filterkorrels worden afgezet doordat ze de gasstroomlijnen rond de korrels niet kunnen volgen [20] (figuur 2.8).

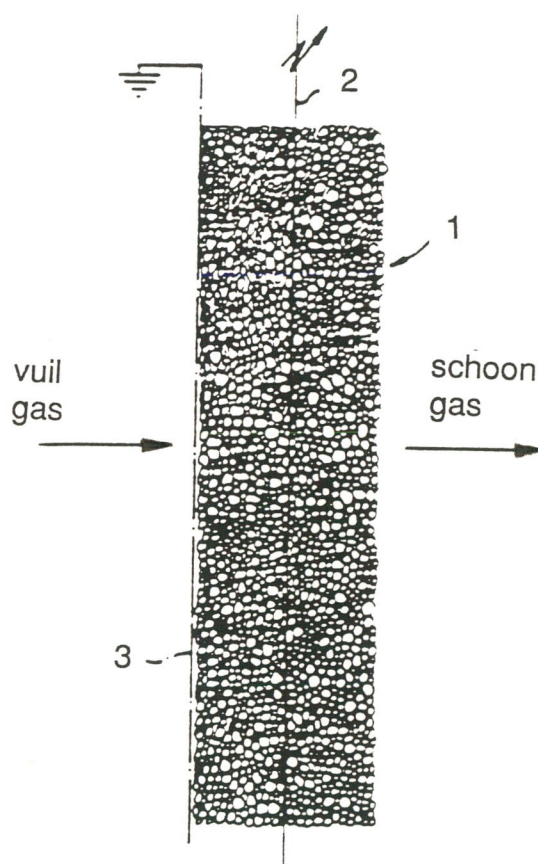


Figuur 2.8 Schematische weergave van enige uitvoeringsvormen van het Dry Plate Scrubber concept van APT. Deze versies zijn zonder elektrostatica. Er is ook een uitvoeringsvorm met toepassing van elektrostatica [20]

De karakteristieke grootheden van korrelmateriaal, gassnelheid, laagdikte (tot ca. 20 cm) en dergelijke komen overeen met die van vaste en bewegende korrelbedfilters, evenals de specificaties van de elektrische componenten. Evenals de vaste korrelbedfilters zijn de gefluidiseerde korrelbedfilters discontinue systemen. Van de verschillende uitvoeringsvormen is dit type in de praktijk het minst ver ontwikkeld.

2.1.4 Gesinterd elektrogranulair filter

Sinds kort wordt er onderzoek gedaan naar de ontwikkeling van een speciale vorm van het vaste geëlektrificeerde korrelbedfilter. Het betreft een tamelijk eenvoudig ontwerp voor een filtersysteem dat bruikbaar kan zijn bij hoge temperatuur [32]. Het systeem bestaat uit een 2 à 5 cm dikke laag van relatief grove korrels (1 à 2 mm). De korrels worden aaneengesinterd tot een compacte zelfdragende plaat. De porositeit van de plaat is ca. 50%. Een hoogspanningsrooster in de filterplaat zorgt voor een sterk, inhomogeen elektrisch veld (ca. 5 kV/cm). De aardelektrode(s) worden gevormd door meegesinterde lagen van (enigszins) geleidende keramische korrels aan het oppervlak. Korrels van SiC zijn in principe geschikt om zo'n geleidende laag te vormen. Aldus ontstaat er een zelfdragende filterplaat uit overwegend keramisch materiaal, die daardoor bestand is tegen hoge temperatuur en corrosieve omgeving (figuur 2.9). Het filterelement wordt voorafgegaan door een corona-eenheid voor het opladen van de stofdeeltjes in de gasstroom.



Figuur 2.9 Gesinterd geëlektrificeerd korrelfilter [32]

De kenmerken van een dergelijk filterelement zijn: een lage initiële drukval (van de schone filterplaat), en een hoge filterefficiëntie door de elektrostatische afvangst van de stofdeeltjes. De stofdeeltjes worden in de buitenste korrellagen van het filter afgezet (oppervlakte filtratie). Doordat er een stoflaag wordt gevormd neemt de drukval sterk toe. Het filterelement kan worden gereinigd met een hoog-volume drukpuls (analoog aan een pulse jet filter bag¹⁾). Deze manier van reinigen is uitermate effectief. Doordat de stromingweerstand van de filterplaat laag is, wordt vrijwel alle energie van de drukpuls gedissipeerd in de afgezette stoflaag, die daardoor (grotendeels) wordt verwijderd. De uiteindelijke drukval van het filtersysteem wordt bepaald door het residuele deel van het stof op de filterplaat. De gassnelheid door de filterplaat ligt rond 0,1 à 0,3 m/s, hetgeen ongeveer tienmaal zo hoog is als bij een doekenfilter; een compacte filtereenheid is daardoor mogelijk. Bij dit systeem is een filterefficiëntie ruim boven 99% haalbaar (zelfs voor submicron stofdeeltjes), bij een gemiddelde drukval van ca. 1000 Pa. De benodigde elektrische hoogspanning voor corona en filter zijn gelijk aan die voor de andere typen korrelbedfilters. De energie, nodig om het filter te reinigen bedraagt 3 à 6 kJ per reinigingspuls per m² filteroppervlak. Als wordt aangenomen dat het filter 4x per uur moet worden gereinigd, dan wordt het gemiddelde benodigde vermogen voor het reinigen van het filter 3 à 6 W per m² filteroppervlak. Voor een gasdebiet van 10.000 m³/u is een filteroppervlak van ca. 15 m² nodig en is het benodigde vermogen voor reiniging 50 à 100 W.

Tot nu toe zijn met dit filter experimenten uitgevoerd op laboratoriumschaal bij kamertemperatuur [33]. Momenteel is het ontwikkelingswerk voornamelijk gericht op de uitvoeringsvorm van een dergelijk filtersysteem, experimenten bij hoge temperatuur en de mogelijke produktietechnieken. Samen met een Nederlands bedrijf en met steun van het Ministerie van Economische Zaken wordt er door TNO een proeffilter ontwikkeld met een oppervlak van ongeveer 1 m², dat zal worden beproefd in het temperatuurgebied van 300 tot 600 °C. De afgassen van een batchgewijs verbrandingsproces zullen worden gebruikt om het filter te testen. Het gasdebiet dat zal worden gebruikt bedraagt ca. 700 m³/u; de stofbelading van het verbrandingsgas is in de orde van 1 g/m³. De filterefficiëntie waarop wordt gerekend, bedraagt minimaal 99%.

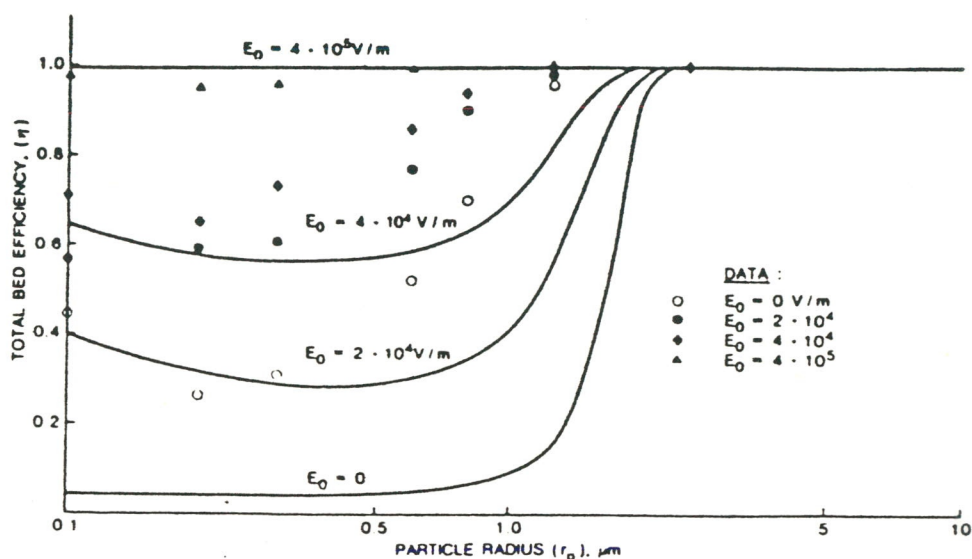
2.1.5 Theorie en praktijk

Opvallend is dat bij fundamenteel onderzoek aan en theorievorming over elektrostatische korrelbedfiltratie meestal wordt uitgegaan van de situatie zoals die optreedt bij een gefluïdiseerd korrelbedfilter. Er wordt namelijk aangenomen dat het stof zich in het gehele bed afzet (dieptefiltratie). Over dit onderwerp bestaat er een groot aantal publikaties [21 t/m 29]; in dit verband moet worden geconstateerd dat de grootste belangstelling voor geëlektrificeerde korrelbedfilters lag in de eerste helft van de tachtiger jaren.

Het fundamentele onderzoek gaat vooral over de efficiëntie van de geëlektrificeerde korrelbedfilters en de invloed van de verschillende parameters daarop. Daarbij is veel onderzoek verricht naar de bijdrage van de verschillende mechanische en elektrische vangstprocessen op het uiteindelijke rendement.

¹⁾ Zakkenfilter dat periodiek elke 5 à 10 minuten wordt gereinigd door een luchtstoot in tegenstroom.

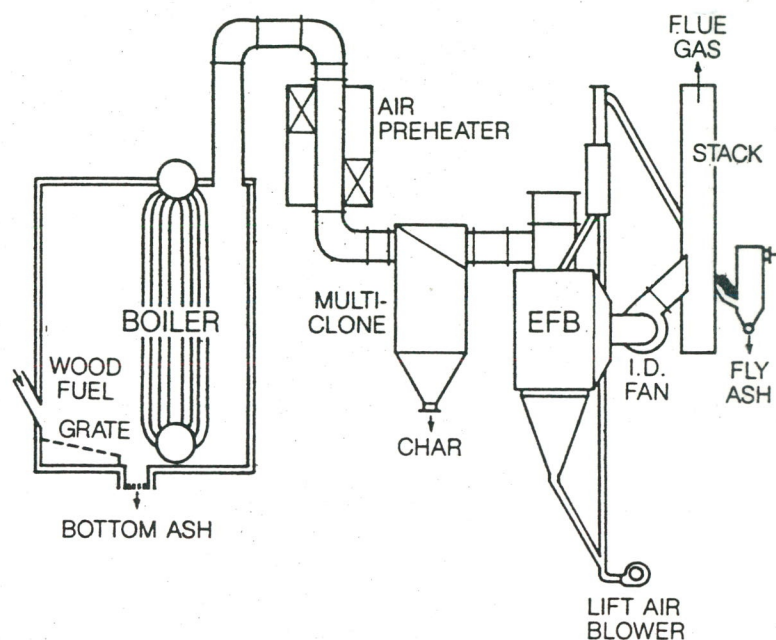
Figuur 2.10 geeft de berekende filterefficiëntie als functie van de deeltjesradius voor een gefluïdiseerd korrelbedfilter met korrels van 0,5 mm effectieve diameter, een laagdikte van 10 cm en een gassnelheid van 1 m/s. De elektrische veldsterkte over de korrelaag is gevarieerd. De berekende efficiëntie voor het afvangen van deeltjes met een diameter van $1\text{ }\mu\text{m}$ neemt toe van ca. 5% zonder elektrisch veld tot bijna 100% bij een elektrische veldsterkte van 400 kV/m. Tevens zijn in de figuur de resultaten van metingen aan een laboratorium filteropstelling gegeven. Theorie en praktijk blijken in redelijke mate met elkaar overeen te stemmen.



Figuur 2.10 Filterefficiëntie als functie van de deeltjesradius voor een elektrostatisch gefluïdiseerd korrelbedfilter. De veldsterkte is gevarieerd van 0 tot 4 kV/cm. De lijnen zijn berekend; de punten zijn experimentele gegevens [37]

Slechts één van de boven beschreven systemen wordt, voor zover bekend, op commerciële basis aangeboden. Het betreft het elektrostatische, bewegende korrelbedfilter van de fabrikant EFB Inc. [14, 30] (figuur 2.6). Het is onbekend in hoeverre dit systeem ook werkelijk in de praktijk toepassing vindt. Ref. [35] geeft informatie over de toepassing van het EFB systeem in houtverbrandingsinstallaties. In [35] is ook een stroomschema gegeven van de toepassing van het EFB filter (figuur 2.11).

Het experimentele roosterloze bewegend korrelbedfilter van Combustion Power Company [11] (figuur 2.4) is meegenomen in de vergelijking van filtersystemen voor PFBC [31]. De conclusie uit die vergelijking was dat voor PFBC-toepassingen de beschikbare filtersysteem elkaar weinig ontlopen in installatie- en bedrijfskosten. De keuze voor een bepaald systeem zal daarom vooral afhangen van de technische resultaten en niet van de kosten.



Figuur 2.11 Schematische weergave van het stroomdiagram van een verbrandingsinstallatie met een bewegend geëlektrificeerd korrelbedfilter [35]

2.2 Technische evaluatie

We kunnen constateren dat de grote belangstelling voor (geëlektrificeerde) korrelbedfilters vooral is ontstaan bij de ontwikkeling van filtersystemen voor wervelbedverbranding van kolen onder hoge druk. In dat geval moet een rookgas bij hoge temperatuur en druk efficiënt worden gereinigd. De bruikbaarheid van korrelbedfilters is overigens niet tot die specifieke toepassing beperkt [29]. Maar net als bij elk ander filtersysteem moet worden nagegaan in hoeverre het geschikt is voor het af te vangen stof. Daarbij spelen verschillende eigenschappen van het stof een rol, zoals deeltjesgrootteverdeling, elektrische geleidbaarheid, kleverigheid, chemische samenstelling. De invloed van deze eigenschappen op de filterprestaties is anders voor de verschillende soorten korrelfilters (vast of bewegend).

De ontwikkeling van zelfdragend gesinterd keramisch filtermateriaal opent de mogelijkheid voor een bredere inzet van elektrostatische korrelfilters onder omstandigheden waar ESP of doekfilter niet optimaal zijn. Dat neemt niet weg dat de invloed van de verschillende eigenschappen op de prestaties van het filtersysteem in feite alleen proefondervindelijk kan worden onderzocht.

In dit verband kunnen de volgende algemene opmerkingen worden gemaakt. Een vast korrelfilter kan een hogere filterefficiëntie bereiken dan een bewegend. In beide gevallen wordt de drukval van het systeem voornamelijk bepaald door de

stofdeeltjes die op de korrels worden afgezet (en ten dele niet verwijderd kunnen worden). In het geval van een vast korrelfilter is de kans op blokkeren (dichtslaan) van het filter mogelijk groter dan bij een bewegend filter. De gemiddelde drukval over een korrelfilter is ongeveer 1000 à 1500 Pa. Voor het aanleggen van een elektrisch veld over het korrelfilter is een hoogspanning van 5 à 25 kV nodig. Door de eindige elektrische geleidbaarheid van het korrelmateriaal treedt er bij het toepassen van hoogspanning een lekstroom op. Deze bedraagt 10 à 100 mA bij een filter voor een gasdebiet van 10.000 m³/u.

In vrijwel alle gevallen wordt er gebruik gemaakt van een corona-eenheid voor het opladen van de stofdeeltjes, ter verhoging van de filterefficiëntie. De effectiviteit van de corona-ontlading hangt af van de condities van het gas (temperatuur en druk); de effectiviteit van de oplading hangt af van de elektrische eigenschappen van de deeltjes.

Onder normale omstandigheden (atmosferische druk, temperatuur tot ca. 300 °C) kan een gelijkspanning worden gebruikt. De benodigde hoogspanning bedraagt 15 à 30 kV en de coronastroom bedraagt ca. 25 mA bij een filter voor een gasdebiet van 10.000 m³/u. Bij een hoge temperatuur (>400 °C) en atmosferische druk lijkt een gepulste hoogspanning meer geschikt. Het betreft dan pulsen met een tijdsduur van 10 à 100 µs, pulsstijgtijd van 1 µs, pulshoogte van 15 à 30 kV en een pulsherhalingsfrequentie van 100 à 1000 Hz.

Een geschikt ontwerp van de corona-eenheid voor het opladen van de deeltjes opent ook nog de mogelijkheid voor een andere gunstige ontwikkeling. Het toepassen van een zogenaamde *positieve streamer corona*¹⁾ [34] kan namelijk tevens leiden tot oxydatie van SO₂ en NO, en bovendien tot bruikbare chemische reacties van andere schadelijke gasvormige componenten.

Absorptie van schadelijke gasvormige componenten in het korrelbed zou eveneens kunnen worden overwogen. Door het filter van daarvoor geschikt korrelmateriaal te maken, dan wel geschikt korrelmateriaal toe te voegen, zouden eventueel gasvormige componenten kunnen worden geabsorbeerd. Daarbij moet wel worden bedacht dat de verblijftijd van het gas in de filterlaag kort is, 0,2 à 1 s. Het is de vraag of dit lang genoeg is om efficiënt gassen te ad- of absorberen.

Verder dient nog te worden opgemerkt dat de mogelijkheid om een rookgas bij hoge temperatuur te reinigen (>400 °C) kan leiden tot vermindering van de dioxine-uitstoot. Dioxine wordt namelijk in het rookgas gevormd bij temperaturen onder 400 °C, onder invloed van de aanwezigheid van deeltjes als katalysator. Wanneer de deeltjes bij een hoge temperatuur uit het rookgas worden verwijderd zal er geen (of minder) dioxine worden gevormd.

Het toepassen van elektrostatische technieken bij korrelfilters voor gasfiltratie is noodzakelijk om een voldoende hoge efficiëntie voor stofvangst te bereiken. Zoals het er nu uitziet, is er blijkbaar één type geëlektrificeerd korrelfilter rijp voor productie op commerciële schaal.

¹⁾ Een uitleg van de diverse typen corona's wordt in hoofdstuk 3 gegeven.

2.3 Economische aspecten

Het is moeilijk om informatie te verkrijgen over de installatie- en bedrijfskosten van dergelijke nieuwe filtersystemen. Er is geen of nauwelijks praktijkervaring, en daardoor is alle informatie over kosten tamelijk vrijblijvend. Zover mogelijk zal de beschikbare informatie worden gepresenteerd.

2.3.1 Roosterloos bewegend korrelbedfilter

In [31] zijn de investeringskosten van een bewegend korrelbedfilter (het concept volgens figuur 2.4, geen elektrostatica), in de toepassing voor het reinigen van de rookgasstroom van een wervelbedketel onder hoge druk (PFBC), vergeleken met andere reinigingsmethoden. Daarbij zijn de bedrijfskosten *niet* meegenomen. De kostenschatting gaat uit van een installatie met een vermogen van 660 MW_e, gasdebiet 825.000 m³/u, druk 10 bar en rookgastemperatuur 900 °C.

De directe investeringskosten (hardware) zijn begroot op ca. Mf 72, waarvan Mf 15 voor de hogedruk voorzieningen. De indirecte investeringskosten (ontwerp, installatie en dergelijke) zijn begroot op Mf 68. De totale investeringskosten zijn derhalve ongeveer Mf 140.

Veronderstellen we een jaarlijkse bedrijfstijd van 6000 uur en een levensduur voor de installatie van 10 jaar, dan zijn de investeringskosten per 1000 m³ rookgas: f 2,80.

2.3.2 Bewegend geëlektrificeerd korrelbedfilter

In [35] worden de investerings-, bedrijfs- en onderhoudskosten gegeven van een bewegend geëlektrificeerd korrelbedfilter volgens het principe van EFB Inc. (figuur 2.6). Daarbij wordt er uitgegaan van een filterinstallatie voor een gasdebiet van 170.000 m³/u bij een temperatuur van ca. 350 °C en atmosferische druk. Voor de corona-oplaadeenheid is een hoogspanningsvermogen van ca. 2 kW (30 kV, 70 mA) nodig, en voor het polariseren van het korrelmateriaal ca. 6 kW (6 kV, 1 A). Het totaal benodigde vermogen is ca. 41 kW, waarvan 31 kW voor het pneumatische systeem voor het transporteren van het korrelmateriaal. Voor de gemiddelde drukval wordt ca. 800 Pa opgegeven. De efficiëntie voor het afvangen van submicrondeeltjes is gespecificeerd op 97%.

De investeringskosten (direct en indirect) zijn begroot op kf 1100, waarvan ca. kf 33 voor de hoogspanningsapparatuur. De bedrijfskosten (energieverbruik van het pneumatische systeem, hoogspanning, en dergelijke) zijn begroot op kf 60 per jaar, en de onderhoudskosten (aanvullen korrelmateriaal, onderhoud hoogspanning en dergelijke) zijn kf 43. De totale jaarlijkse kosten zijn derhalve kf 100, waarbij vermoedelijk geen rekening is gehouden met afschrijving, verzekering, en dergelijke.

Gaat men uit van een bedrijfstijd van 6000 uur per jaar en een levensduur van 10 jaar, dan kunnen de investeringskosten worden berekend op ca. f 0,11 per 1000 m³ rookgas. De bedrijfskosten (energie en onderhoud) kunnen eveneens worden berekend, en bedragen ca. f 0,10 per 1000 m³.

Het totaal benodigde vermogen is 41 kW, zodat het energieverbruik ca. 0,25 kWh per 1000 m³ bedraagt.

2.3.3 Vast geëlektrificeerd korrelbedfilter

In [5] zijn gegevens gepresenteerd betreffende de investerings- en bedrijfskosten van een vast geëlektrificeerd korrelbedfilter. Het filter bestaat uit een laag korrelmateriaal, opgesloten tussen twee gazen. Het hoogspanningsrooster bevindt zich halverwege de korrelaag. Vóór het korrelfilter is een corona-oplaadeenheid geplaatst (figuur 2.12).

De kosten zijn berekend voor een modulaire unit voor een gasdebiet van 10.000 m³/u, te gebruiken tot een temperatuur van ca. 300 °C bij atmosferische druk. Als gemiddelde drukval is 1250 Pa opgegeven; de verwachte efficiëntie voor submicrondeeltjes is >99%. Het filter wordt periodiek gereinigd met een hoogvolume drukpuls. Voor het overwinnen van het drukverlies van 1250 Pa is een vermogen van ca. 6 kW nodig. Het elektrische vermogen (corona en hoogspanning voor filter) bedraagt ca. 0,7 kW.

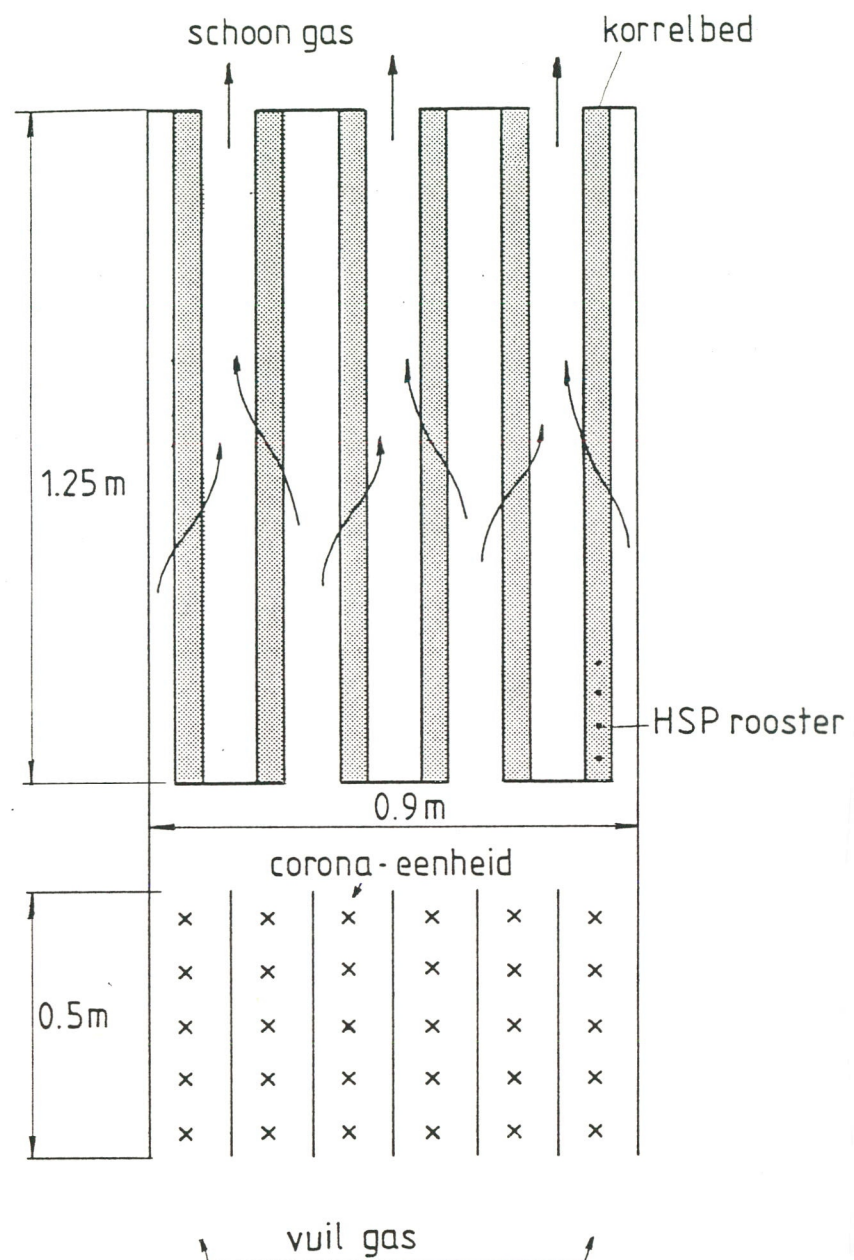
De investeringskosten van een dergelijke installatie zijn geschat op kf 125 (1985 gulden). Uitgaande van een bedrijfstijd van 6000 uur per jaar en een energieprij van f 0,25 per kWh kunnen de jaarlijkse bedrijfskosten worden berekend op kf 10. De onderhoudskosten (vervangen korrelmateriaal, onderhoud installatie en dergelijke) zijn geschat op ca. kf 20. De totale jaarlijkse kosten (exclusief afschrijving) worden dan ca. kf 30.

Met een bedrijfstijd van 6000 uur per jaar en een levensduur van 10 jaar voor de installatie kunnen de investeringskosten worden berekend op f 0,21 per 1000 m³. De kosten bedragen dan f 0,50 per 1000 m³. Het energieverbruik bedraagt ca. 0,7 kW per 1000 m³.

2.3.4 Gesinterd elektrogranulair filter

Het is nog voorbarig om de kosten van het gesinterde elektrogranulaire filter te kunnen schatten. Het energieverbruik, en daarmee de bedrijfskosten, zijn vermoedelijk gelijk aan die van het vaste geëlektrificeerde korrelbedfilter, beschreven paragraaf 2.3.3. De onderhoudskosten zullen zeker niet hoger zijn, omdat het korrelmateriaal niet vervangen moet (c.q. kan) worden. Ook de investeringskosten zullen zeker niet hoger zijn. De prijs van het vaste geëlektrificeerde korrelbedfilter wordt grotendeels bepaald door de stijve roosterconstructie die nodig is om het korrelmateriaal vast op te sluiten. Deze constructie is bij het zelfdragende gesinterde filter niet nodig.

Het is niet uitgesloten dat bij onvoldoend effectieve reiniging van het filter met de hoogvolume drukpuls de drukval over het filter in de loop van de tijd (minimaal enige jaren) toeneemt. De filterinstallatie kan zodanig worden ontworpen dat het vervangen van de filterelementen eenvoudig is, vooral bij gebruik van cilindervormige filterelementen. Bij grote installaties kan het filtersysteem zodanig worden ontworpen (bijvoorbeeld in de vorm van modules) dat het vervangen van de filterelementen kan plaatsvinden terwijl de installatie in bedrijf is.



Figuur 2.12 Schematische weergave van een uitvoering van een vast geëlektrificeerd korrelbedfilter met corona-oplading van het stof. Het filter wordt gereinigd door een hoogvolume drukpuls [5]

2.3.5 Voorlopig overzicht bedrijfskosten

De investeringskosten en de jaarlijkse kosten voor korrelbedfilters, waarvan de gegevens in de literatuur zijn gevonden, zijn samengevat in tabel 2.1. Het betreft respectievelijk een

- niet-geëlektrificeerd, roosterloos bewegend korrelbedfilter voor PFBC toepassingen (10 bar, 900 °C) [31];
- geëlektrificeerd bewegend korrelbedfilter voor het reinigen van het rookgas van een houtverbrandingsinstallatie (350 °C) [35];
- geëlektrificeerd vast korrelbedfilter voor toepassingen tot ca. 300 °C [5].

Tabel 2.1 Overzicht van de investerings- en bedrijfskosten van drie verschillende (geëlektrificeerde) korrelbedfilters

Ref	Gascondities				Gegevens per 1000 m ³ gas		
	T [°C]	p [bar]	debiet [10 ³ m ³ /u]	efficiëntie	invest. [f]	bedrijf. [f]	energie [kWh]
31	900	10	825	99,5	2,8	--	--
35	350	1	170	97	0,11	0,10	0,2
5	≥300	1	10	99,9	0,20	0,50	0,7

Allereerst valt natuurlijk het uitzonderlijk grote verschil in de verkregen resultaten op.

In hoeverre de hoge investeringskosten voor het systeem volgens [31] worden veroorzaakt door de extreme condities (900 °C, 10 bar) is niet na te gaan. Het is wel waarschijnlijk dat het overgrote deel van het verschil in de kosten daardoor wordt veroorzaakt.

Het verschil in investerings- en jaarlijkse kosten tussen de systemen van [35] en [5] wordt mogelijk veroorzaakt door de schaalgrootte. De investeringskosten nemen minder dan evenredig toe met de omvang van de installatie. Daarnaast is het vermoeden gerechtvaardigd dat in [35] niet alle onderdelen (en derhalve kosten) van de installatie zijn meegenomen. Zo is er geen rekening gehouden met het ventilatorsysteem voor het overwinnen van het drukverlies van 800 Pa over het filterbed. Bij een gasdebiet van 170.000 m³/u bedraagt het daarmee gemoeide mechanische vermogen nog altijd 40 kW. Mogelijk is er ook geen rekening gehouden met een afvoersysteem voor de vliegashoudende gas. Verder bestaat er een verschil in de energiekosten in de VS (f 0,17 per kWh, 1985-gegevens) en Nederland (f 0,20 à 0,25 per kWh, 1985-gegevens).

De conclusie uit deze vergelijking moet zijn dat het geven van een schatting van de investerings- en bedrijfskosten voor een (geëlektrificeerd) korrelbedfilter slechts op indicatieve basis mogelijk is.

Ten overvloede wordt er op gewezen dat een korrelbedfilter vrijwel uitsluitend geschikt is voor het afvangen van (vloeibare en vaste) deeltjes. Daarbij moet worden opgemerkt dat de emissie van gasvormige componenten die bij relatief

lage temperatuur worden gevormd onder invloed van de aanwezigheid van deeltjes kan worden verminderd door de deeltjes bij hoge temperatuur af te vangen.

2.4 Referenties

- [1] Onderzoek bij Westinghouse, geciteerd in F. van Dam, H. de Winter. 'Vlieggasfilters voor kolengestookte installaties in de industrie'. Technisch-economische evaluatie voor het Min. van Economische Zaken, juni 1983.
- [2] Patent nr. US 4067704. 'Granular bed filter'. Ducon Co. Inc.
- [3] J. Andries; Technische Universiteit Delft, Laboratorium voor Energietechniek, persoonlijke contacten.
- [4] Patent nr. US 3926587. 'Electrostatic filtration in panelbed'. A.M. Squires.
- [5] P.H. de Haan; 'Geëlektrificeerd korrelbedfilter voor vlieggasfiltratie'. KRI-TNO rapport nr. 640/'85 (1985).
- [6] Patent nr. EP 0035973. 'Verfahren und Einrichtung zum diskontinuierlichen reinigen staubbeladener Rohgase'. Gimag AG.
- [7] Patent nr. GB 2070973. 'Moving bed gas filter'. Rexnord Inc.
- [8] J.L. Guillory; 'Progress in high temperature moving bed granular filter development at CPC'. Proc. 2nd Ann. Contractors Meeting on Gas Stream Clean Up, Morgantown, WV, USA (1982).
- [9] Patent nr. DE 2918779. 'Vorrichtung zum entstauben von Gase'. BASF.
- [10] Patent nr. DE 2942223. 'Verfahren und Vorrichtung zum entfernen von Festkörperen aus Gase'. Combustion Power Company.
- [11] J.L. Guillory, F.M. Placer, D.S. Grace; 'Electrostatic enhancement of moving bed granular filtration'. Environ. Int. 6 (1982) 387.
- [12] Patent nr. US 4035170. 'Granular filter'. EPA.
- [13] D.J. Muller, R.R. Boericke, J. Alexander; 'Electrostatic granular bed filter development program'. Proc. 2nd Ann. Contractors Meeting on Gas Stream Clean Up. Morgantown, WV, USA (1982).
- [14] Patent nr. WO 81/00524. 'Filter apparatus and method for collecting fly ash and fine dust'. EFB Inc.
- [15] Patent nr. GB 2090773. 'Electrostatically augmented granular bed filter for high temperature particulate removal'. GE Co.

-
- [16] Patent nr. US 4154585. 'Fluidized bed particulate collectors'. MIT.
- [17] Patent nr. US 4038049. 'Electrofluidized beds for collection of particulates'. MIT.
- [18] P.B. Zieve, K. Zahedi, J.R. Melcher, J.T. Denton; 'Electrofluidized bed in filtration of smoke emission from asphaltic pavement recycling process'. *Environ. Sci. & Technol.* **12** (1978) 96.
- [19] P.H. de Haan, J.L.B. de Groot; 'Afvangst van vliegas uit rookgas van een AFBB-ketel met behulp van elektrofilters'. KRI-TNO rapport nr. 145/'83 (1983).
- [20] S. Calvert, S. Yung, R. Jain, T. Le, H. Bratton, M. Duncan; 'APT dry plate scrubber for particulate collection at high temperature and pressure'. *Proc. 2nd Ann. Contractors Meeting on Gas Stream Clean Up*. Morgantown, WV, USA (1982).
- [21] K. Zahedi, J.R. Melcher; 'Electrofluidized beds in the filtration of submicron aerosol'. *J. Air Poll. Contr. Ass.* **26** (1976) 345.
- [22] P.W. Dietz; 'Electrostatic filtration of inertialess particles by granular beds'. *J. Aerosol Sci.* **12** (1981) 27.
- [23] T.W. Kalinowski, D. Leith; 'Aerosol filtration by a cocurrent moving bed granular bed: penetration mechanisms'. *Environ. Int.* **6** (1981) 379.
- [24] G.M. Colver; 'Bubble control in gas-fluidized beds with applied electric fields'. *Powder Technol.* **17** (1977) 9.
- [25] C. Gutfinger, G.I. Tardos; 'Theoretical and experimental investigations on granular bed dust filters'. *Atmos. Environ.* **13** (1979) 853.
- [26] M. Shapiro, G. Laufer, C. Gutfinger; 'Electrostatically enhanced granular bed filters'. *Aerosol Sci. & Technol.* **5** (1986) 39.
- [27] M. Shapiro, G. Laufer, C. Gutfinger; 'Experimental study on electrostatically enhanced granular filters'. *Aerosol Sci. & Technol.* **5** (1986) 435.
- [28] M. Tichman, C. Gutfinger, D. Pnuelli; 'Effect of particle loading in granular bed filtration in the cluster enhanced filter model'. *J. Aerosol Sci.* **19** (1988) 425.
- [29] M. Shapiro, C. Gutfinger, G. Laufer; 'Electrostatic mechanisms of aerosol collection by granular filters: a review'. *J. Aerosol Sci.* **19** (1988) 651.
- [30] EFB Inc. Particulate Control Systems. Wilmington, Mass. USA, Brochure 'Elektro-Kiesbett-Filter'.

- [31] R. Zaharchuk, T.L. Buchanan, L.N. Rubov, M. Borden; 'Cost evaluation of four PFBC hot gas clean-up systems'. Proc. 7th Int. Conf. on Fluidized Bed Combustion. Philadelphia, PA, USA, (1982) Vol. I, p. 491.
- [32] Patent nr. EP 88 201469. 'Filter device'. TNO.
- [33] P.H. de Haan, M.L.G. van Gasselt, L.M. Rappoldt; 'Electrified granular filter for high temperature gas filtration'. 8th Symp. on the Transfer and Utilization of Particulate Control Technology, San Diego, Cal. USA (1990).
- [34] A. Mizuno, J.S. Clements, R.H. Davis; 'A method for the removal of sulfur dioxide from exhaust gas utilizing pulsed streamer corona for electron energization', IEEE Trans. on Ind. Appl. IA-22 (1986) 516.
- [35] J.C. Alexander; 'Control of particulate emissions from bark and wood fired boilers with the electrified filter bed', Pulp & Paper Canada, 87 (1986) 81.
- [36] G. Tardos, R. Pfeffer; 'Granular bed filters for the removal of particulates from gases- a review', Proc. of the Tech. Program of the Inst. Powder and Bulk Solids Handl. and Process., Philadelphia, 1979 pp.55-79.
- [37] G.A. Kallio, P.W. Dietz, C. Gutfinger; 'Filtration efficiencies in electrostatically augmented granular beds', Environmental Int. 6 (1981) 415.
- [38] E.J.M. van Heesch, A.J.M. Pemen, W. van der Snoek, P.F.M. Gulickx, P.C.T. van der Laan; 'Metingen aan gepulste negatieve corona in het temperatuurgebied 20 °C - 860 °C', Rapport Technische Universiteit Eindhoven, rapportnr. EHO/MEMO/88/63 (1988).

3 (Gepulste) elektrische ontladingen

W.R. Rutgers, N.V. KEMA

Voor het reinigen van rookgassen zijn vele natte en droge chemische processen ontwikkeld om aan de huidige en toekomstige wetgeving ten aanzien van emissie-eisen te kunnen voldoen. In dat kader worden ook elektrische methoden, zoals de elektrostatische stofvanger, verbeterd. Daarnaast zijn nieuwe elektrische methoden, gericht op *chemische* reiniging van (rook)gassen in ontwikkeling, die gebruik maken van dissociatie en oxydatie van schadelijke stoffen door ionen en radicalen die geproduceerd worden in elektrische ontladingen. Voor dit doel is het nodig om het elektrische veld in de ontlading hoog te maken, zodat de energie van de elektronen oploopt tot vele eV (elektronvolt). Dit lukt beter in gepulste ontladingen dan in stationaire dc ontladingen, onder andere omdat bij gepulste ontladingen minder snel doorslag plaatsvindt.

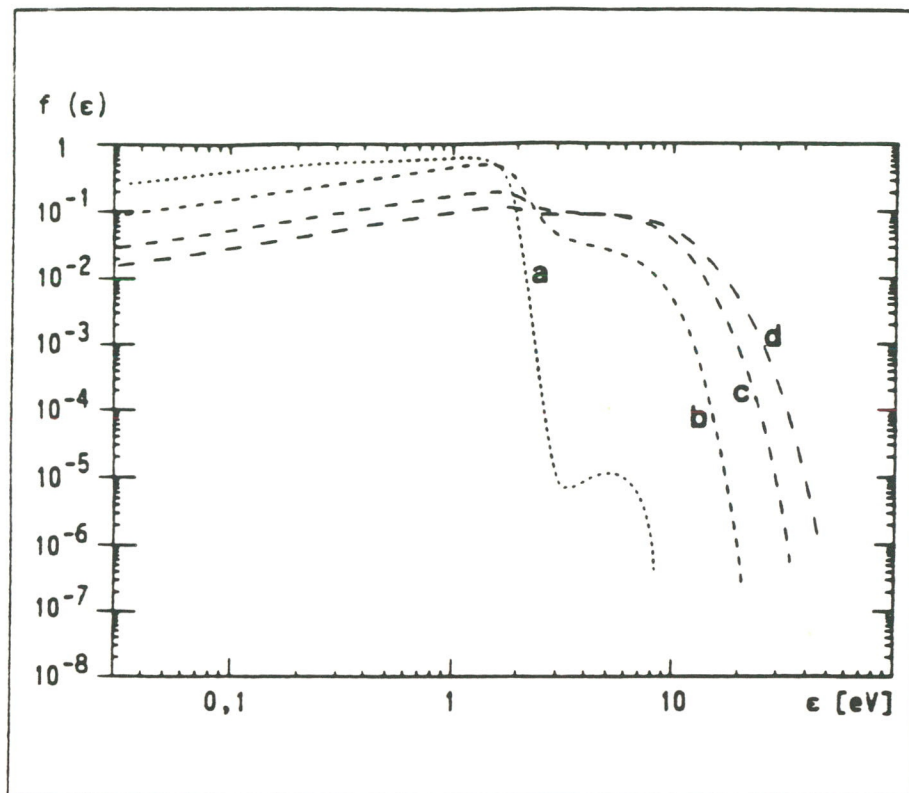
De hier besproken technieken berusten alle op de vorming van een niet-thermisch *plasma*. Een plasma is een geïoniseerd gas. De ionen en radicalen in het plasma zijn in hoge mate chemisch reactief. De toepasbaarheid van de diverse plasma-chemische technieken is breed. Zij loopt van grootschalige deNO_x/deSO_x bij kolenstookte centrales (ordegrootte 10⁶ Nm³/u rookgas), via verwijderen van NO_x, HCl en Hg-damp bij vuilverbranders (orde 10⁵ Nm³/u) en van H₂S gas bij oliaffinaderijen tot het verwijderen van vluchtige organische componenten zoals oplosmiddelen uit verf en etsmiddelen (phenol, styreen, xyleen, toluene, benzene, formaldehyde) bij (kleinschalige) industriële installaties en het reinigen van uitlaatgassen van dieselmotoren.

In dit hoofdstuk worden drie typen elektrische ontladingen besproken die worden toegepast voor het afvangen van schadelijke stoffen uit gassen bij atmosferische druk:

- gepulste corona-ontladingen
- stille ontladingen of 'surface barrier' ontladingen en
- glimontladingen.

Deze ontladingen komen in aanmerking vanwege het hoge elektrische veld (op gasdichtheid genormaliseerde veldsterkte $E/N = 100$ à 1000 Townsend¹⁾) waardoor veel elektronen versneld worden tot energieën tussen 4 eV en 20 eV, zodat dissociatie van moleculen optreedt (zie figuur 3.1 overgenomen uit **Zaengle** [1] en berekend aan de Universiteit van Toulouse door **Yousfi** [8]). Deze veldsterktes zijn echter zo hoog dat ze bij een homogeen veld in gas leiden tot elektrische doorslag (vonken en boogontladingen). Daarom verdienen corona ontladingen (sterk inhomogeen veld) met gepulste voeding (figuur 3.2) en stille ontladingen (isolerende laag op de elektrode) de voorkeur boven glimontladingen en dc corona.

¹⁾ E = Veldsterkte (V/cm); N = gasdichtheid (aantal deeltjes per cm³);
1 Townsend (Td) = 10^{-17} Vcm²



Elektronenenergieverteilung in Abgas

Elektronenenergieverteilung $f(\epsilon)$ für ein synthetisches Abgas ohne NO. berechnet mit Boltzmann-Code (normiert auf 1)
Zusammensetzung des synthetischen Abgases: 13% CO₂, 80.6% N₂, 6% O₂, 0.4% H₂O

a 20 Td

b 80 Td

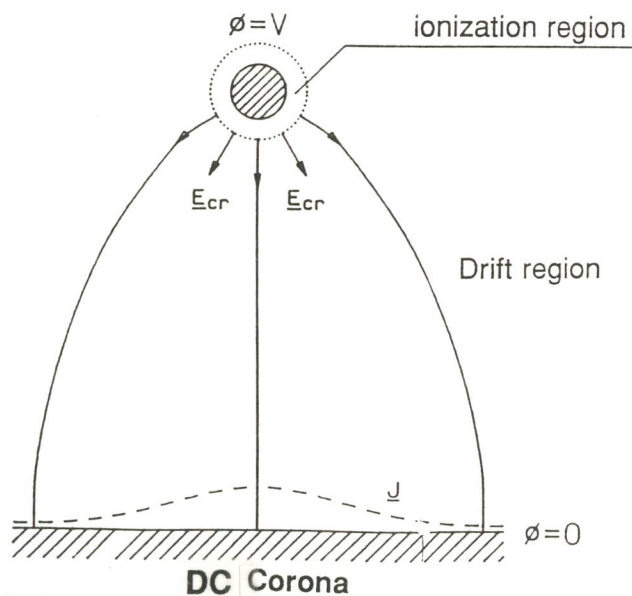
c 185 Td

d 300 Td

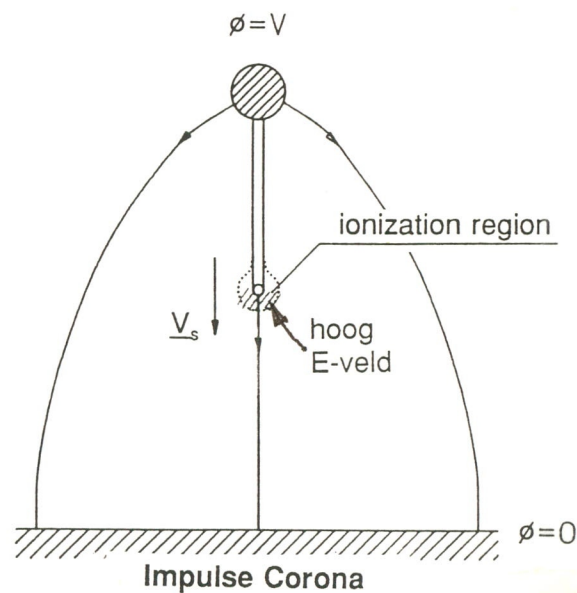
1 Td = 10⁻²¹ Vm²:

4.0467 Td = 1kV/cm bar

Figuur 3.1 Energieverdeling van de elektronen voor diverse waarden van de genormeerde elektrische veldsterkte E/N [1] (Td = Townsend)



Schematic representation of DC Corona discharge with indication of the ionization and drift regions.



Schematic representation of Impuls Corona discharge with indication of the moving ionization region.

Figuur 3.2 Het verschil tussen de dc-corona en streamer corona [2]

3.1 Corona ontladingen

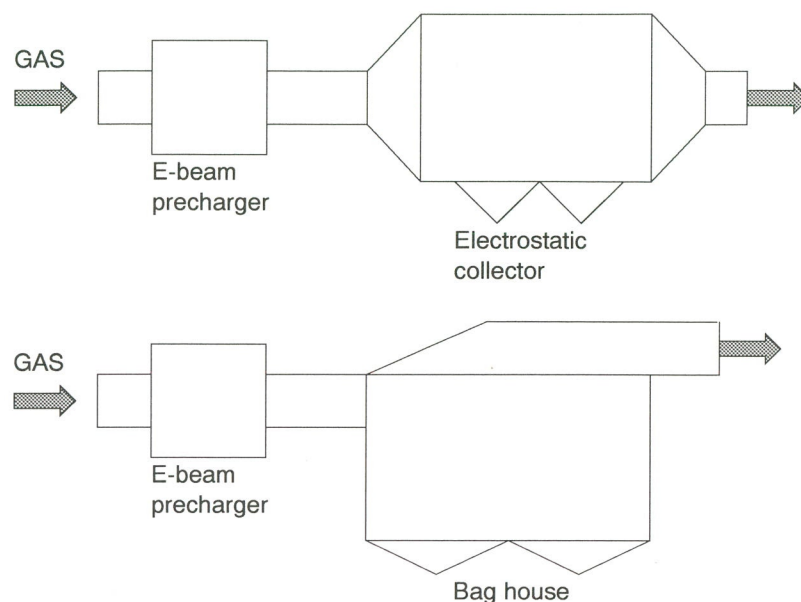
Corona ontladingen worden al sinds 1923 gebruikt in elektrostatische stofvangers. Het vangstproces is gebaseerd op het opladen van stofdeeltjes door ionen en elektronen die in de ontlading geproduceerd zijn. Het stof wordt door elektrostatische krachten naar een plaat toegetrokken en, na kloppen, verzameld in een afvoerbak. Om het vangstrendement te verbeteren en het energieverbruik te verminderen worden tegenwoordig pulsvoedingen toegepast [5] in het bijzonder bij hoog resistieve as en bij het verbranden van kolen van variabele samenstelling. De voordelen van het gebruik van een gepulste hoogspanningsvoeding zijn:

- de stroomverdeling over de draad is veel homogener bij pulsvoeding dan bij gelijkspanningsvoeding, waardoor geen stroomconcentraties ontstaan in de stoflaag die tot doorslag zouden kunnen leiden.
- de lading op de deeltjes, die afhangt van de maximale spanning, is hoger bij een pulsspanning met lage duty-cycle¹⁾ dan bij een gelijkspanning, omdat de spanning in het eerste geval hoger kan worden opgevoerd. Dit verbetert het vangstrendement, wat vooral belangrijk is voor kleine stofdeeltjes (diameter <1 µm).
- Door de deeltjes op te laden met een pulsspanning, die gesuperponeerd is op een gelijkspanning voor het verwijderen van de deeltjes, kan het energieverbruik worden verminderd.
- door de pulsduur, herhaalfrequentie en amplitude te variëren is de stroom onafhankelijk van de spanning te regelen. Hierdoor kan het werkpunt van de precipitator eventueel continu, tijdens bedrijf, worden aangepast aan wisselende omstandigheden (gasdebiet, elektrische weerstand stoflaag, rookgassamenstelling etc). Dit opent mogelijkheden voor on line procesregeling; deze optie wordt thans industrieel uitgetest door het Italiaanse elektriciteitsbedrijf ENEL bij een centrale [3].

Ook wordt onderzoek verricht om het vangstrendement, in het bijzonder voor kleine stofdeeltjes, te verbeteren met behulp van een zogenaamde pre-charger [22], figuur 3.3. Daarnaast kan de corona-techniek worden gebruikt voor het vernietigen van giftige gassen, bijvoorbeeld vluchtige organische componenten (tabel 3.1, [9] en figuur 3.4), de oxydatie van NO_x en SO_x tot zuren (rookgasreiniging), het omzetten van SO₂ en NO_x in ammoniumzouten [3, 20], figuur 3.5, en de productie van ozon, voor rookgasreiniging, waterreiniging of als bleekmiddel [23]).

¹⁾ Verhouding tussen pulsduur en tijd tussen twee opeenvolgende pulsen (herhaaltijd).

Two stage systems for respirable particle removal



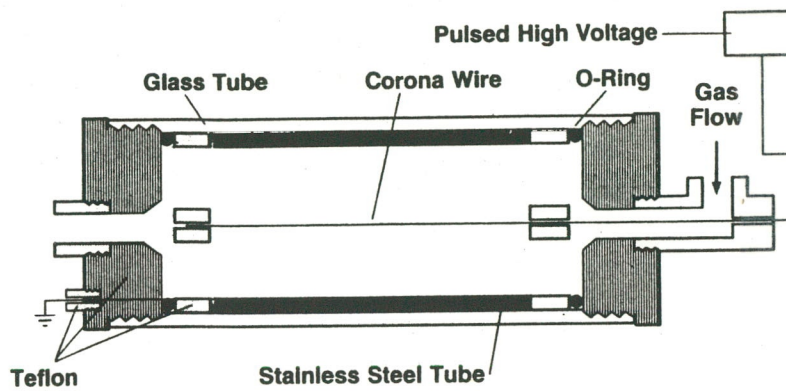
Figuur 3.3 Tweetraps deeltjesreinigers met een elektronenbundel voor opladen in de eerste trap [22]

Tabel 3.1 Toepassingen voor diverse soorten plasmareactoren [10]

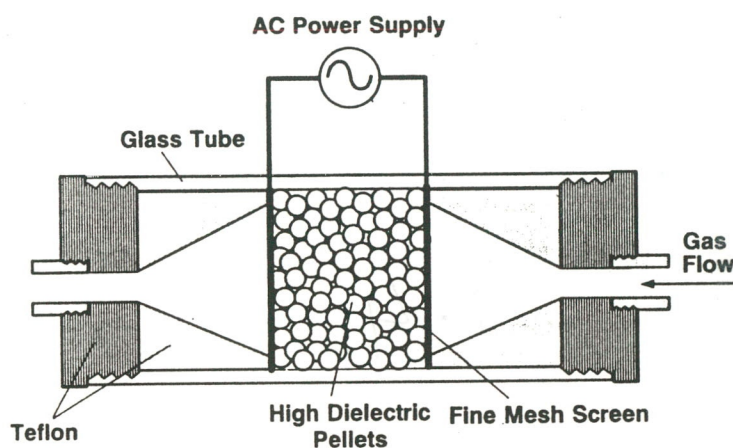
Applications	Type of Reactor
Ozone Production	PPD, ACPD, SD, DD
OH Production	SD
Reforming Gas Production	CT, CTD
Reduction of SO ₂ ¹⁾	PCD, PPD, CT, CTD
Reduction of NO _x	PCD, PPD, CT, CTD
Reduction of Hg	PCD
Reduction of HCl	PCD
Reduction of CO ₂	PPD, CT, CTD
Reduction of CH _x	CT, CTD
Destruction of toluene	PPD, GDFC
Destruction of trichlorotrifluoroethane	PPD, GDFC
Destruction of trichloroethane	PPD
Destruction of dimethyl-methyl-phosphate	PPD
Thin film depositions	PPD, SF
Production of ultrafine particles	PCD

CT (Corona torch), CTD (Capillary tube discharge), ACPD (AC packed bed), PCD (Pulsed corona discharge), SD (Silent discharge), DD (Double discharge), SF (Surface discharge), GDFC (Glow discharge flow channel), PPD (Point-plane discharge)

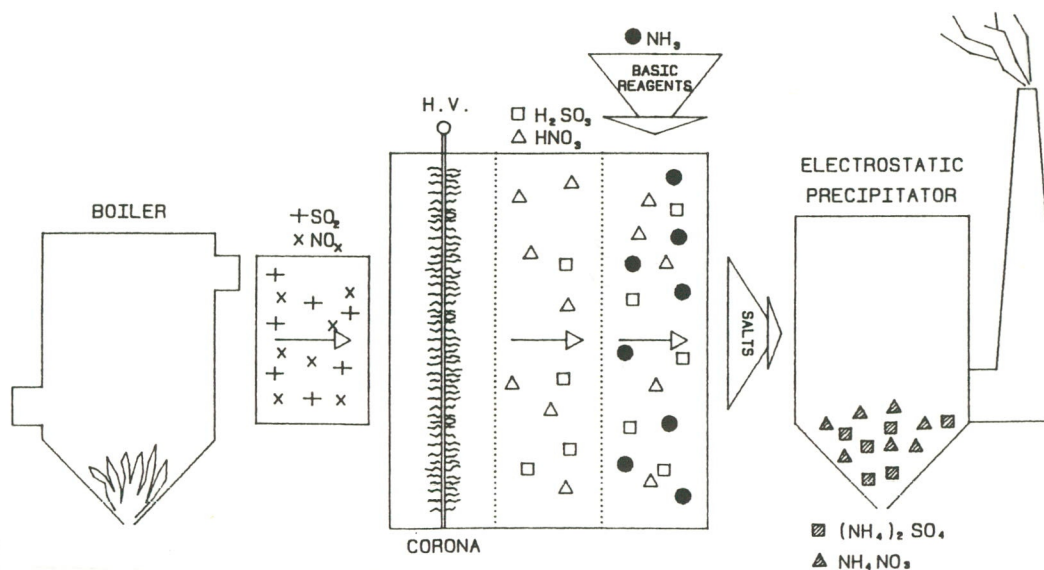
1) Het woord 'reduction' betekent hier het verminderen van de hoeveelheid.



Schematic of pulsed corona plasma reactor.



Figuur 3.4 Puls corona reactor en, als alternatief, een korrelbedreactor voor het verwijderen van VOC's [10]

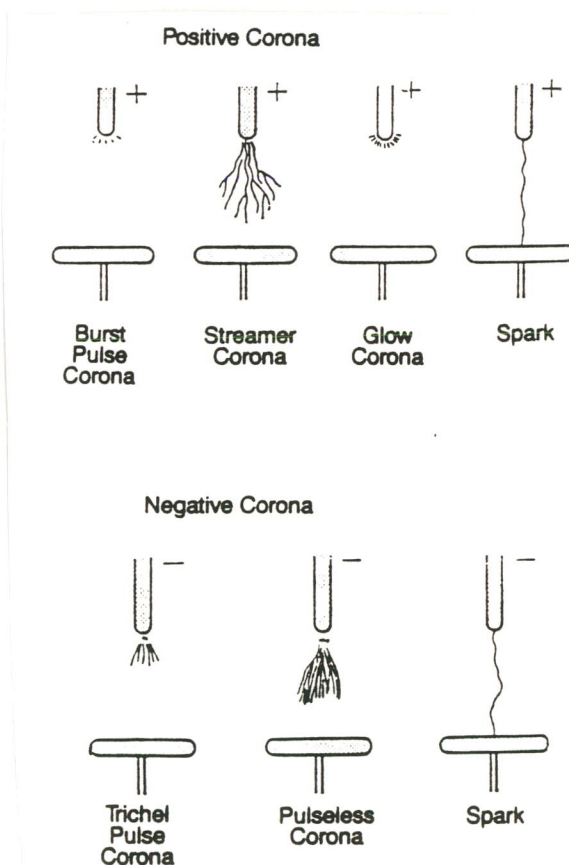
Figuur 3.5 Gecombineerde deNO_x/deSO_x bij een kolengestookte centrale

Deze toepassingen zijn een alternatief voor natte chemische gasprocessen; zij worden aangeduid met termen als elektrochemische oxydatie, plasmakatalyse etc.

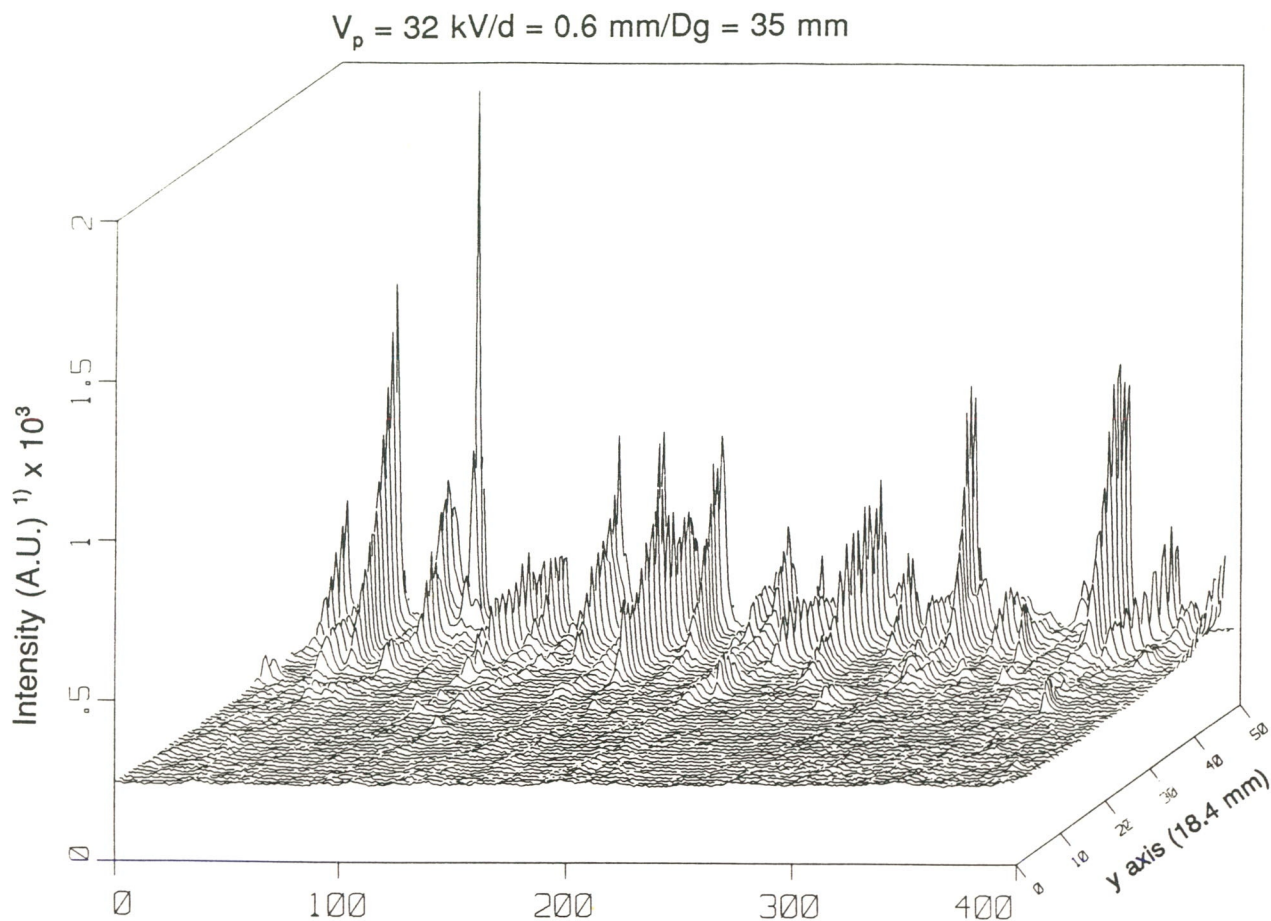
Corona ontladingen komen in diverse vormen voor. De vorm hangt met name af van polariteit, veldsterkte, elektrodegeometrie, gassamenstelling en van de puls-vorm van de spanning. Enkele voorbeelden staan in figuur 3.6 uit [10]. Uit figuur 3.6 wordt duidelijk dat het begrip 'corona' in feite een verzamelnaam is voor verschillende typen ontladingen. Essentieel is echter steeds dat het veld sterk inhomogeen moet zijn om een corona te kunnen genereren.

Afhankelijk van de toepassing moet een bepaald type corona worden gekozen, om een zo hoog mogelijk rendement te verkrijgen. Voor stofafvangst, bijvoorbeeld wordt een Trichel pulscorona gebruikt; voor plasmakatalyse een streamercorona. De andere typen zijn in dit verband van minder belang. De glow corona is wel gebruikt voor chemische processen [12, 32] maar kost te veel elektrische energie omdat de ontlading, en dus de produktie van ionen en/of radicalen, beperkt is tot een klein gebied rond de actieve elektrode. Bovendien is de veldsterkte, en daardoor de elektronenenergie, laag. Voor het op gang brengen van chemische omzettingen wordt meestal de positieve streamer corona gebruikt omdat:

- de streamers zich uitbreiden in een groot volume gas, (figuur 3.7), en
- de veldsterkte aan de kop van de streamer dermate hoog is dat elektronen een karakteristieke energie in de orde van 10 eV krijgen, terwijl het gas koud blijft.



Figuur 3.6 De diverse verschijningsvormen van corona, uit [10]



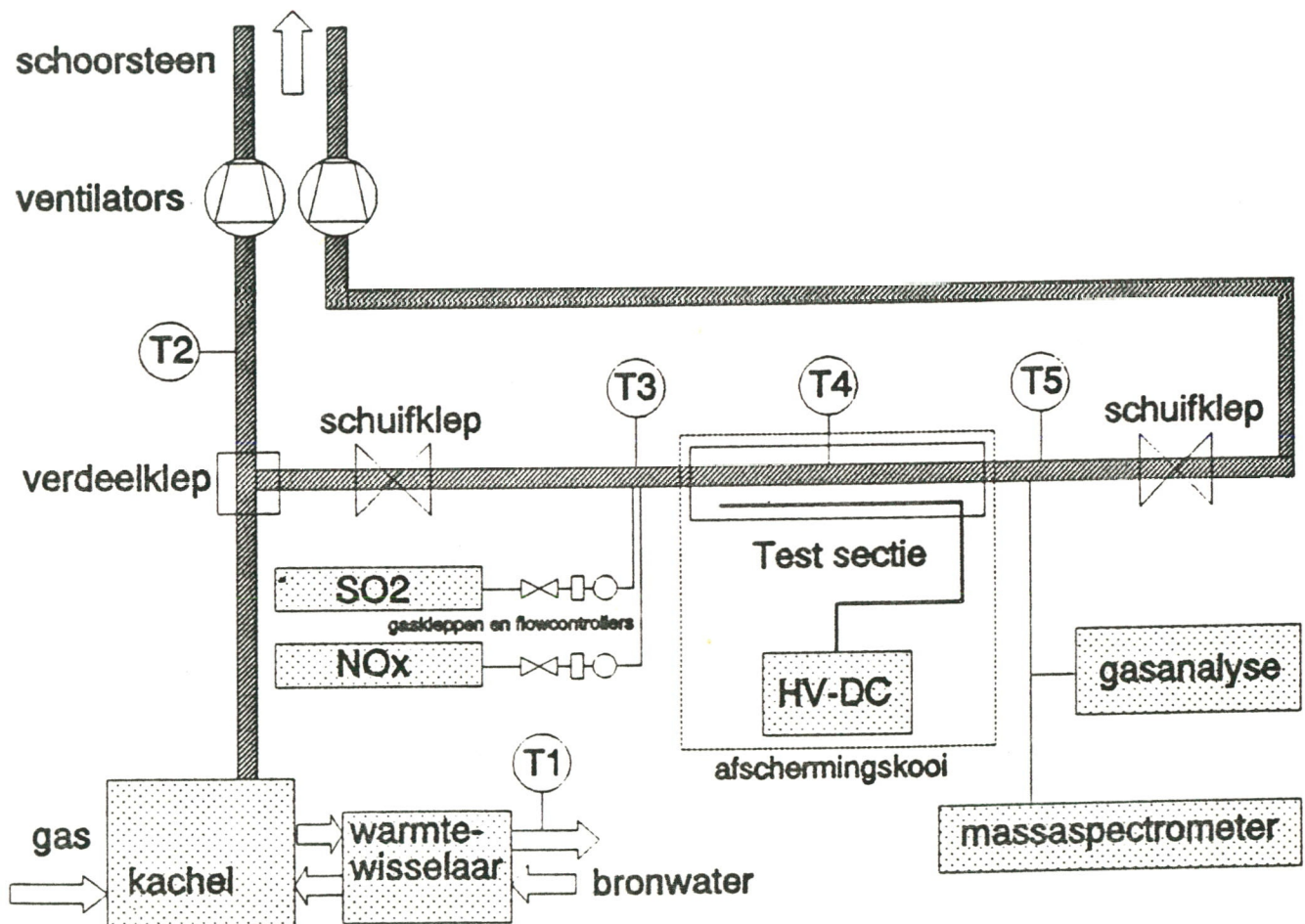
Figuur 3.7 Streamer corona langs een draad (op de achtergrond, 37 mm lang) opgenomen met een CCD²⁾ camera door Y. Creighton, TUE

¹⁾ a.u.: Arbitrary Units

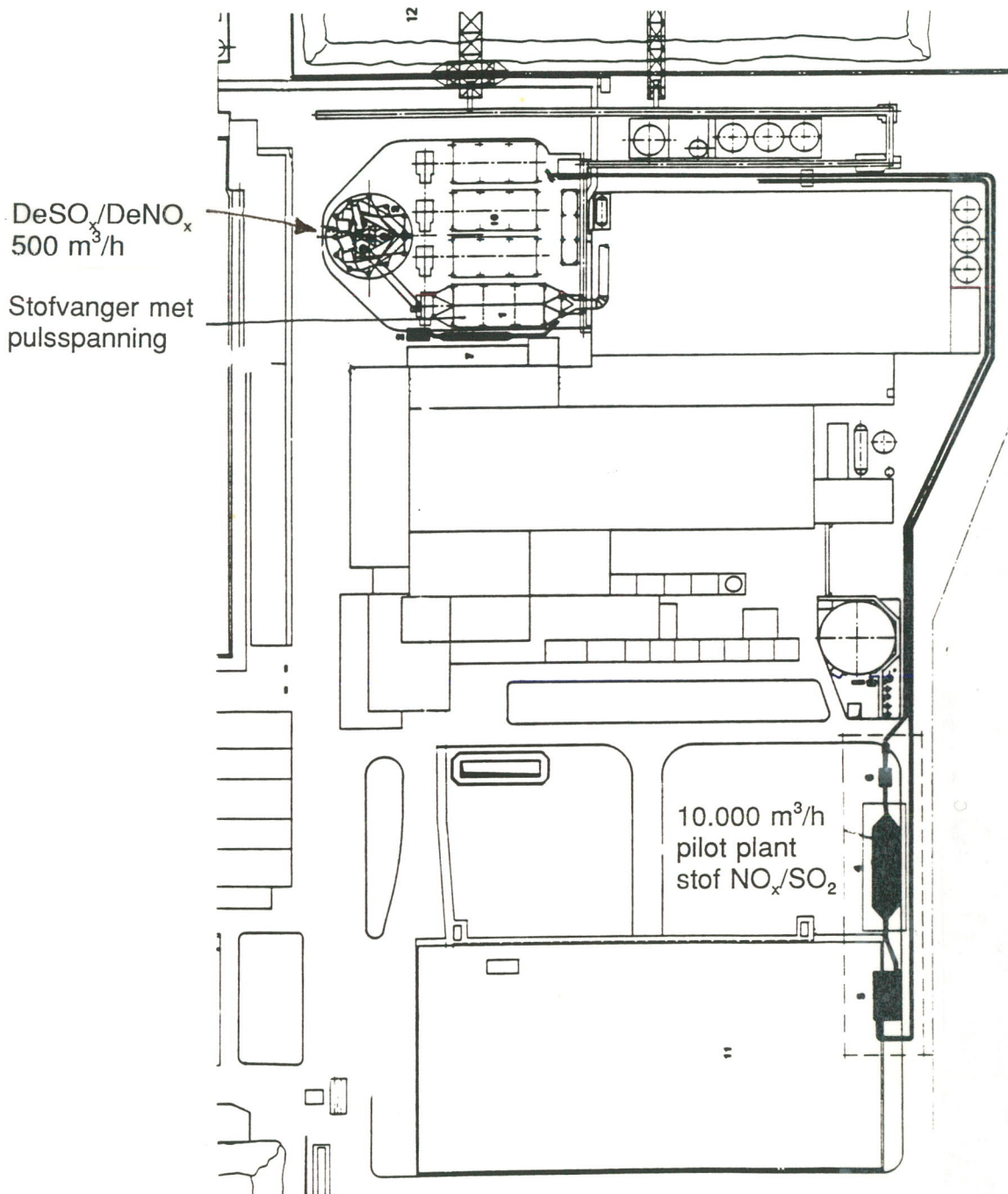
²⁾ CCD: Charge Coupled Device

Vanwege het minstens 10× hogere rendement bij het gebruik van kortdurende pulsspanningen (met sub- μ sec stijgtijd) ten opzichte van de glowcorona [32, 24] zijn streamer corona's nu onderwerp van studie in laboratoriumopstellingen (Universiteit van Tokyo [20], Florida [15], Eindhoven, figuur 3.8 [19]), en het IVTAN, het Instituut voor Hoge Temperaturen in Moskou). Verder wordt deze techniek uitgetest in een pilot-plant bij ENEL in Italië [3], voor het reinigen van rookgas uit een kolengestookte elektriciteitscentrale, figuur 3.9 en 3.10.

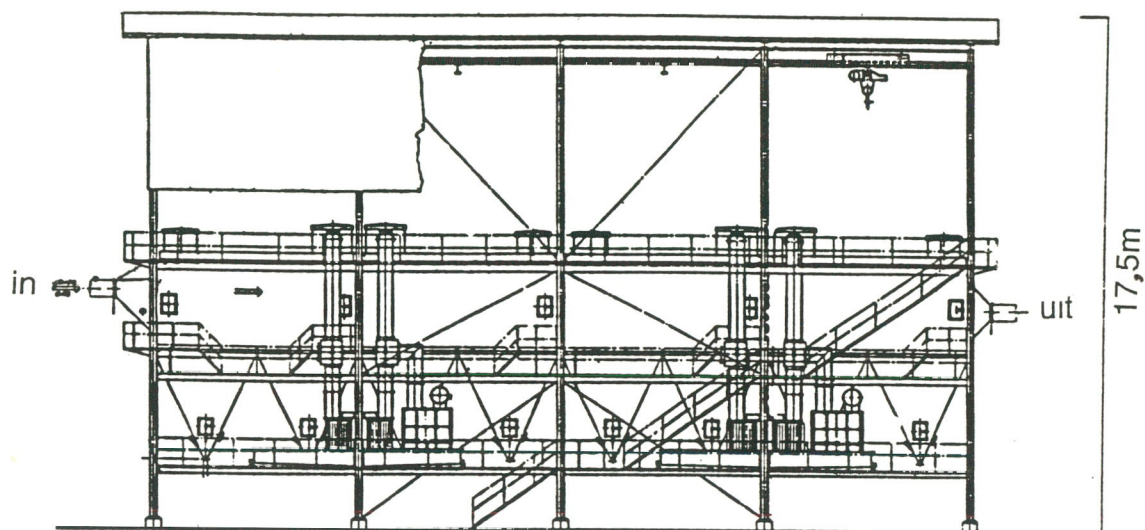
Daarnaast lopen, onder andere in de USA bij het EPA en in Rusland in het hoogspanningslaboratorium van het Power Engineering Institute in Moskou, programma's om gepulste corona toe te passen voor het verwijderen van organische en anorganische stoffen uit lucht en water. Daarbij zijn de reinigingsrendementen vaak hoog, bijvoorbeeld 99% voor phenol, styreen en xyleen bij een specifiek vermogen van 15 tot 25 Wh/m³. **Masuda** [20] noemt 80 Wh/m³ voor CFK's en heeft in het laboratorium goede resultaten behaald bij stankbestrijding (uitgaande van 1 ppmNH₃ + 1 ppmH₂S + 1 ppmCH₃SH). Hierbij worden aerosolen gevangen in een elektrostatische stofvanger en wordt de corona tevens gebruikt voor de productie van ozon. Geurstoffen, bacteriën en het restant ozon worden verwijderd aan een katalysatoroppervlak door O-radicalen uit ozon.



Figuur 3.8 Rookgasreinigingsopstelling bij de TUE-vakgroep Elektrische Energiesystemen



Figuur 3.9 Experimentele faciliteiten bij de Marghera centrale bij Venetië



Figuur 3.10 Pilot-plant voor vangst van stof (1e sectie) $\text{deSO}_x/\text{deNO}_x$ (2e sectie) en vangst amoniumzouten (3e en 4e sectie) in Marghera

Het specifieke vermogen voor grootschalig chemisch reinigen van gassen ligt in de orde van 10 tot 15 Wh/m³ bij kolengestookte centrales en afvalverbranders. Onderzoek is gaande om dit vermogen te verlagen. De omzetting van SO₂ en/of NO_x in zure mist en/of deeltjes aerosol is gepatenteerd (US patent 4, 695, 358). Dit proces is niet droog en mengt de vlieggas met zuur, waardoor hergebruik niet mogelijk is.

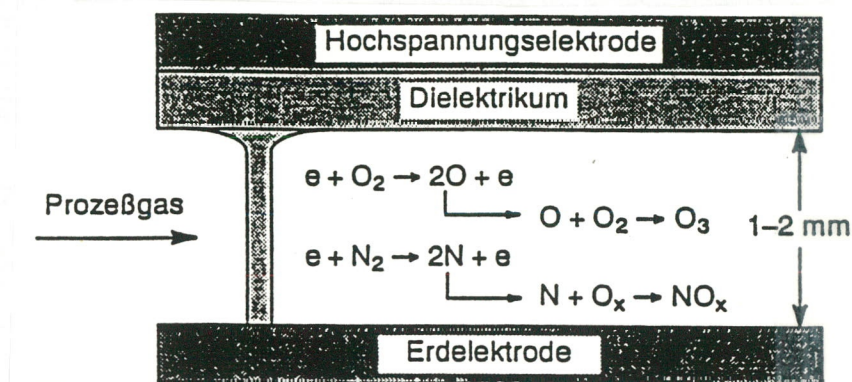
Corona ontladingen kunnen ook worden gebruikt voor de conversie van gas, bijvoorbeeld van CO₂ in CO, zoals onderzocht door **Boukhalfa** [17]. Toepassing van deze techniek voor rookgasreiniging is voorgesteld door **Maezuono en Chang** [18] om CO₂ emissie bij elektriciteitsopwekking te reduceren. Energetisch is dit niet aantrekkelijk.

Een proces waarbij gebruik wordt gemaakt van een elektrostatische precipitator, die is omgebouwd voor het vangen van stof en SO₂ (de zogenaamde 'E-SO_x'), [16] is uitgeprobeerd op pilot-plant schaal in de USA. Gezien het beperkte deSO_x rendement (60%) en de menging van kaliumsulfaat met de vlieggas, wat hergebruik bemoeilijkt, is dit proces echter minder interessant.

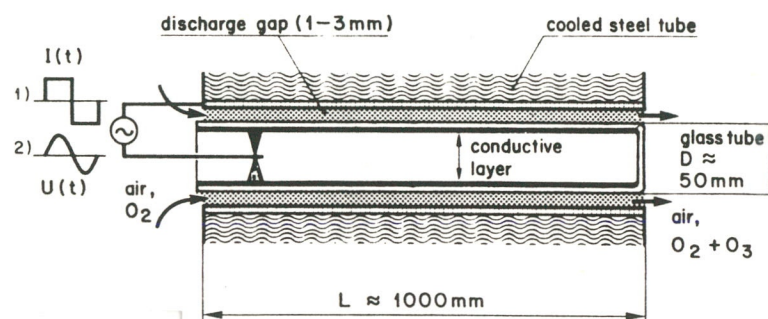
3.2 Stille ontladingen

Behalve de in 3.1 besproken corona ontladingen, die in een inhomogeen veld worden opgewekt, bestaat nog een principieel ander soort ontlading, waarmee eveneens hoge waarden van E/N kunnen worden gerealiseerd. Dit is de 'surface barrier' ontlading, ook wel stille ontlading genoemd. Hierbij is het niet nodig om met steile hoogspanningspulsen te werken; met een voeding van 50 Hz of, beter, enkele kHz, kunnen gepulste micro-ontladingen worden opgewekt. Doorslag wordt voorkómen door één of beide elektroden te bedekken met een isolator – vandaar ook wel de naam 'dielectric barrier discharge'.

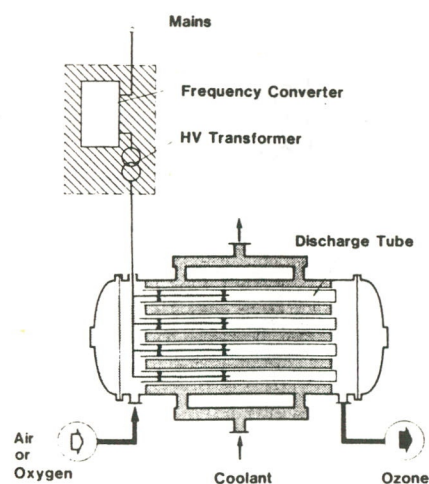
Doordat de isolerende laag op vele plaatsen door micro-ontladingen wordt opgeladen, wordt vonkvorming voorkómen, figuur 3.11 uit [27].



Figuur 3.11 Ozon wordt geproduceerd in een stille ontleding [27]

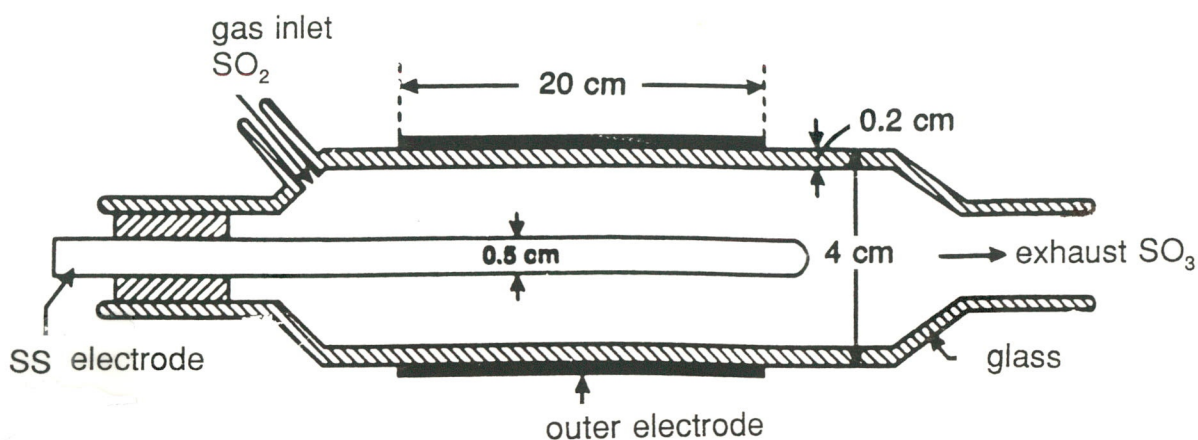


Schematic diagram of an ozone discharge tube.



Technical ozone generator with frequency converter and HV transformer.

Figuur 3.12 Industriële produktie van ozon in coaxiale pijpen met 50 Hz of KHz frequenties [33]



Figuur 3.13 Plasma ondersteunde oxydatie van SO_2 in een stille ontlading [26]

Conversie van SO_2 naar H_2SO_4 met behulp van stille ontladingen is bestudeerd door **Chang** [25] door proeven uit te voeren in vochtig gas. Hierdoor werden veel OH radicalen en ozon geproduceerd. Door tevens te bestralen met UV-licht wordt de ozon weer afgebroken, en dragen de hierbij gevormde O-radicalen bij tot extra OH productie uit H_2O . Voor het oxyderen van SO_3 naar H_2SO_4 is een minimale concentratie H_2O noodzakelijk, die in rookgassen ruim voorhanden is.

Chang's conclusie is: 'From an energy budgeting viewpoint, only short-pulse excitation schemes are likely to be efficient enough to be considered for commercial applications'.

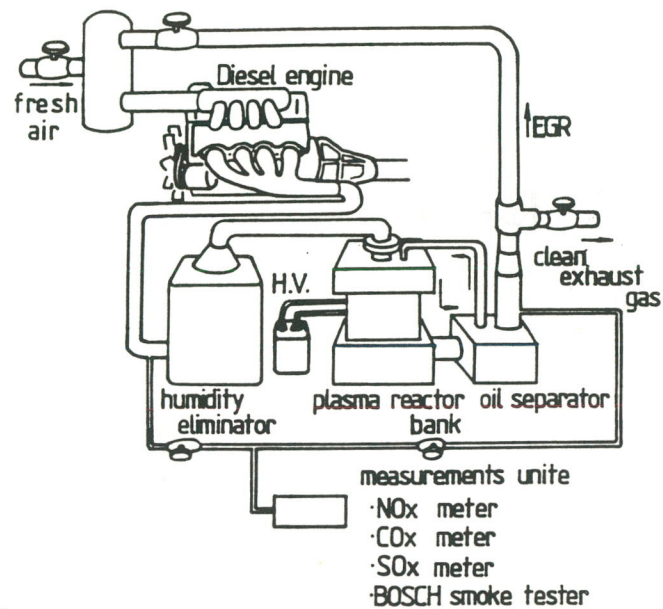
Ook andere gassen kunnen worden behandeld, zoals H_2S . **Traus**, [28] beschrijft het afbreken van H_2S met behulp van een omgebouwde ozonisator die geschikt is voor hoge temperaturen (560°C). H_2S wordt door stille ontladingen omgezet in uiteindelijk stabiele H_2 en S_8 moleculen.

Het ligt voor de hand dat de stille ontlading, net als de pulscorona, voor nog veel meer toepassingen kan worden ingezet. Nader onderzoek is noodzakelijk om de technische en economische haalbaarheid te kunnen evalueren.

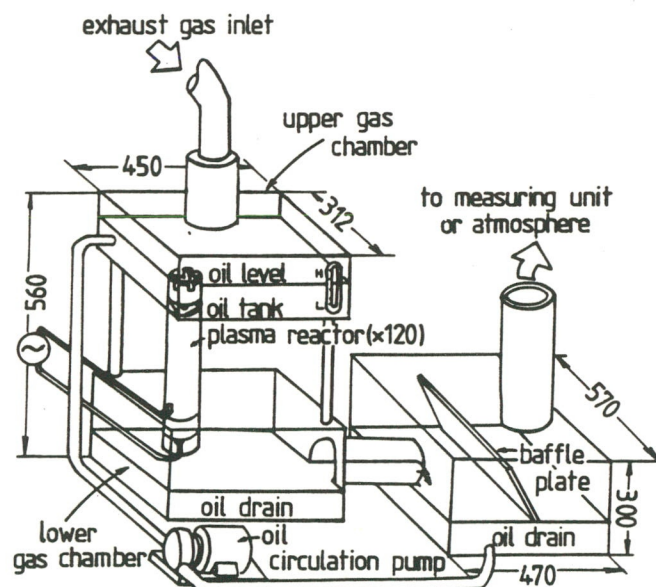
Het rendement van ozonproductie (60 à 100 g/kWh) is door **Kozlov**, [29] verhoogd tot 400 g/kWh, door een pulsspanning te gebruiken met een stijgtijd van 1 à 3 kV/ns.

Door **Higashi**, [30] wordt beschreven hoe roet, NO_x en SO_x kunnen worden verwijderd uit de uitlaatgassen van een (2 liter) dieselmotor (figuur 3.14) (zie ook 5.1.3).

Elektrische technieken voor gasreiniging; een evaluatie van toekomstige toepasbaarheid



a. Schema van complete experimentele opstelling



b. Voorbeeld van plasma reactor

Figuur 3.14 Corona reiniging van uitlaatgassen van een dieselmotor

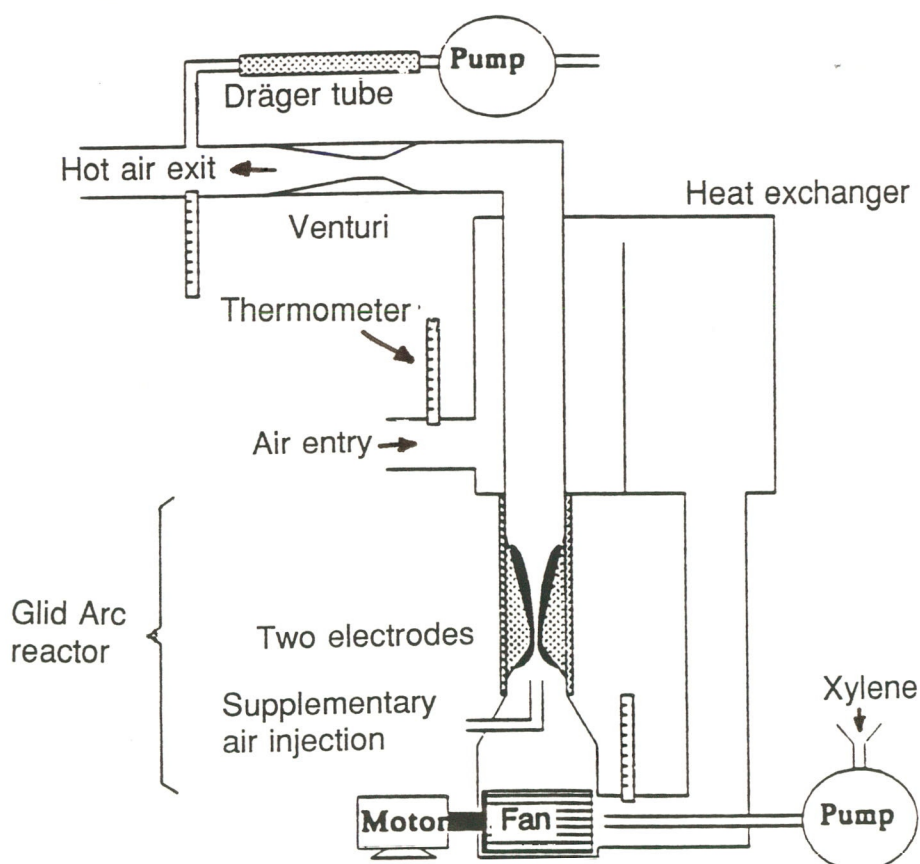
3.3 Glimontladingen

De glimontlading is in feite de ontlading, die voorkomt bij de gewone TL-buis. Hij wordt gekenmerkt door een hoge brandspanning (10^2 à 10^3 V). Bij de TL-buis is de gasdruk laag; voor industriële toepassing worden nu glimontladingen bij atmosferische druk geproduceerd. (De glimontlading is dus *niet* hetzelfde als de glow corona). Proeven op laboratorium en op semi-industriële schaal, uitgevoerd in het midden van de jaren 80 [13, 32], gericht op het verwijderen van NO en SO₂ uit (gesimuleerd) rookgas, hebben aangetoond dat hiervoor weliswaar een glimontlading kan worden gebruikt, maar dat het energieverbruik hoog is (100-200 Wh/m³).

Bij het afbreken van organische dampen is het energieverbruik minder kritisch, omdat bij conventionele methoden het gas sterk moet worden opgewarmd, bijvoorbeeld tot 800 °C voor xyleendamp.

Met een hoge druk glimontlading ('gliding arc') is **Czernickowski** [33, 34] in staat, met een energie-input van 80 Wh/m³, leidend tot 220 °C temperatuuroptima, de concentratie xyleendamp bij een verfstraat in een automobielfabriek te reduceren van 200 tot 50 ppmv (figuur 3.15).

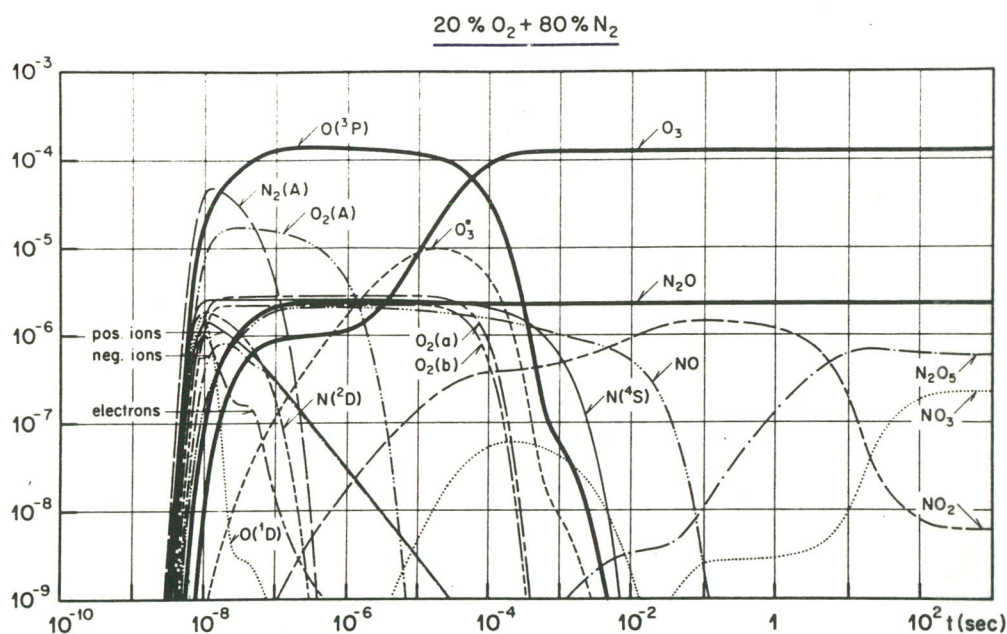
De 'GlidArc' reactor is ook met succes toegepast voor vernietigen van H₂S en CH₃SH.



Figuur 3.15 Semi-industriële opstelling met 'GlidArc reactor' voor het afbreken van xyleen

3.4 Modelleren

Het modelleren van niet-evenwichts plasma's en processen is een gecompliceerde zaak. In de hier beschreven plasma's ¹⁵ zijn een aantal vereenvoudigingen mogelijk zoals: het plasma is quasi neutraal¹⁾, de ionisatiegraad is laag, de toegevoerde energie gaat voornamelijk naar elektronen (en ionen) en niet naar het neutrale gas, de hete elektronen worden, zowel bij de streamercorona als bij de stille ontlading geproduceerd in filamenten. De elektronensnelheidsdistributiefunctie kan worden berekend op basis van een dergelijk stelsel van aannamen uit de Boltzmann-vergelijking (zie figuur 3.1). Vervolgens kan de productie van ionen en radicalen worden berekend uit botsingsdoorsneden voor processen, zoals de dissociatie van O_2 moleculen in O-radicalen. Deze processen spelen zich af op microseconden tijdschaal. Het reageren van radicalen en de vorming van de eindprodukten kan veel langzamer verlopen. Een goed voorbeeld is figuur 3.16, waarin de vorming van ozon uit lucht wordt gegeven als functie van de tijd na een micro-ontlading. Voor berekeningen van dit soort processen in rookgas moeten zeer veel reacties (honderden) worden meegenomen en moet, op de langere tijdschaal, ook de verspreiding vanuit de filamenten naar het omringende gas in het model worden betrokken. Dergelijke berekeningen worden uitgevoerd in het Instituut voor Hoge Temperaturen in Moskou en zullen geverifieerd worden door metingen aan de TU Eindhoven.



Figuur 3.16 Modelberekening van de productie van ozon uit lucht, [31].
Let op de logarithmische tijdschaal en concentratieschaal

¹⁾ Evenveel positieve als negatieve deeltjes.

3.5 Systeemstudies

Om inzicht te krijgen in de technische haalbaarheid en kosten is, onder andere in Rusland en Italië, een aantal systeemstudies verricht voor grootschalige toepassing van rookgasreiniging. De Italiaanse studie naar rookgasreiniging met behulp van pulscorona gaat uit van een kolengestookte centrale die 320 MW aan elektriciteit levert en een concentratie van 500 ppmv SO₂ en 250 ppmv NO_x in de rookgassen heeft, die verminderd moeten worden tot < 25 ppmv SO₂ en < 100 ppmv NO_x.

De grootste investering betreft de hoogspanningspulsvoeding; de hoogste bedrijfskosten zitten in de additieven, die nodig zijn voor een goede kwaliteit van het restprodukt. De totale reinigingskosten bedragen volgens deze studie 1,7 ct/kWh tegen 2,4 à 3,1 voor selectieve katalytische reductie (NO_x) en natte gaswasser (SO₂) [9].

Uit een Russische studie [6] (1988) blijkt, dat gecombineerde elektrische deSO_x/deNO_x 15 tot 20% van de investering van de centrale kost, tegenover 15 tot 20% voor deSO_x en 20 tot 25% voor deNO_x¹⁾ apart, met conventionele techniek. Daarbij is uitgegaan van een kolencentrale van 500 MWe en toevoeging van ozon en ammoniak. Bestraling met elektronenbundels leidt tot kosten die vergelijkbaar zijn met die van het pulscorona proces.

De geproduceerde restprodukten, omgezet in kunstmest, zijn getest door het Moldavian Institute of Agricultural Chemistry en blijken van goede kwaliteit te zijn. Grootschalige toepassing van ozon is mogelijk en aantrekkelijk geworden door het toepassen van thyristor gestuurde voedingen die pulsen van 500 Hz tot enkele KHz produceren voor het opwekken van stille ontladingen. Dit heeft de efficiëntie en de vermogensdichtheid een ordegrootte verbeterd. Hierdoor worden deze ontladingen nu ook aantrekkelijk als stralingsbronnen voor grootschalige industriële UV behandelingsprocessen.

3.6 Literatuur

3.6.1 Algemeen

- [1] Walter Zaengle et al.; Zur Reduction der gasförmigen Schadstoffe in Abgase mit Hilfe elektrischer Entladungen. Bulletin SEV/VSE 82, (1991) 27-35.
- [2] I. Gallimberti; Physical models of corona discharges. Proc. third Int. Conf. on Electrostatic Precipitations, Abano-Padova, Italy 1987, Invited lecture pp. 25-43.
- [3] G. Dinelli; An integrated approach for flue gas cleaning by impulse energization techniques. Proc. IEE Colloquium 'Current environmental applications of electrostatic precipitation' London, digest 1991/18 paper 6.

¹⁾ Thans zijn lagere kosten haalbaar, maar volgens een recente studie van MITI, Japan, is gecombineerde bestrijding nog steeds goedkoper.

- [4] G. Dinelli and M. Rea; Pulse power electrostatic technologies for the control of flue gas emissions. *Journal of electrostatics* **25**, (1990) 23-40.
- [5] H.F.A. Verhaart; Verbetering elektrostatische vliegsvanger door pulsvoeding. *Elektrotechniek* **69**, (1991) 731- 734.
- [6] K.J. Mc. Lean; Electrostatic precipitation, IEE review. *IEE Proc.* **135** Pf A, (1988) 347-361.
- [7] H.J. Hall; History of pulse energization in electrostatic precipitation, Review. *Journal of electrostatics* **25**, (1990) 1-22.
- [8] M. Yousfi, A. Poinsignon, A. Hamani; Electron data base needed for discharge modelling in flue gas treatment. Nato advanced research workshop on Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control, Cambridge, England, September 1992, p. 123-124.
- [9] L. Civitano, persoonlijke mededeling, januari 1992.

3.6.2 Corona ontladingen

- [10] Jen-Shih Chang; EMC and EMP in an industrial corona process. *Proc. Int. Wroclaw Symp. on EMC*, p. 485-491, 1990.
- [11] Jen-Shih Chang, Phil A. Lawless and Toshiaki Yamamoto; Corona discharge processes. *IEEE Trans. Plasma Science* **19**, (1991) 1152-1166.
- [12] A. Scheuermann, W.H. Bloss; Verfahren zur Entstehung und Entschwefelung von Verbrennungsabgasen mittels Corona-Entladungen. *Kernforschungszentrum Karlsruhe KfK-PEF 47* (1988).
- [13] I.E. Kanter; Research and Development for advanced combined NO_x/SO_x removal systems. Final report by Westinghouse R&D Centre prepared for US department of energies DOE/PC/60261-T23, 1986.
- [14] S. Masuda and H. Nakao; Control of NO_x by positive and negative pulsed corona discharges. *IEEE Trans on Industry Applic.* **26**, (1990) 374-383.
- [15] Clements, J.S., Minuzo, A., Finney, W.C. and R.H. Davis; Combined Removal of SO₂, NO_x, and Fly Ash from flue gas using pulsed streamer corona. Dept. of Physics, Florida State University, Tallahassee, Florida 32306 CH 2272 - 3/86/000 - 1183 \$1,00, © 1986 IEEE.
- [16] L.S. Hovis; Evaluation of the E-SO_x Process on the EPA Pilot Electrostatic Precipitator. EPA - 600/7-90-011 (1990).
- [17] Boukhalfa et al.; Conversion du CO₂ en CO par decharge couronne dans des melanges air-CO₂. *Rev. Int. Hautes Temp. Refract.* **26**, (1990) 39-48.

- [18] I. Maezuono and J. Chang; Reduction of CO₂ from combustion gases by DC corona torches. IEEE Trans. Ind. Appl. 26, (1990) 651-655.
- [19] Y.L.M. Creighton et al.; Streamer characteristics of positive pulsed corona. Proc. 10th Int. Symp. on Plasma chemistry, Bochum 1991, paper 3.2-5.
- [20] S. Masuda; Pulse corona induced plasma chemical process: horizon of new plasma chemical technologies. Pure & Appl. Chem. 60, (1988) 727-731.
- [21] S. Masuda et al.; Integrated air purifier for control of aerosol, microbial and odor in living environments, Proc. IEEE - IAS Meeting 1991, pp. 769-775.
- [22] R.H. Davis; Flue gas cleanup technology utilizing energetic electrons. Final report to the US Department of Energy, DOE/PC/91021-T9 (1990).
- [23] Gebruik van ozon voor denitrificatie van afvalgassen lijkt kansrijke optie. PT Aktueel, nummer 47, 22 november 1989.
- [24] H. Suhr, S. Schiestel; NO-Minderung in Rauchgasen durch Koronaentladungen mit Metalloxid-Belegung der Plattenelektrode. BWK 43, (1991) 502-504.

3.6.3 Stille ontladingsen

- [25] M.B. Chang et al.; Removal of SO₂ from gas streams using a dielectric barrier discharge and combined plasma photolysis. J. Appl. Phys 69, (1991) 4409-4417.
- [26] S.K. Dhali and I. Sardja; Dielectric-barrier discharge for processing of SO₂/NO_x. J. Appl. Phys 69, (1991) 6319-6324
- [27] D. Braun; Zum Wirkungsgrad von Ozonerzeugers. Proefschrift RWTH Aachen (1990).
- [28] I. Traus and H. Suhr; H₂S-Dissociation in an ozoniser discharge at elevated temperatures. Proc. 10th Int. Symp. on Plasma Chemistry, Bochum 1991, paper 3.2-10.
- [29] K.V. Kozlov et. al; Peculiarities of ozone generation in dielectric barrier discharge supplied by impulse voltage. Ibid paper 3.2-13.
- [30] M. Higashi et al.; Soot elimination and NO_x and SO_x reduction in diesel-engine exhaust by a combination of discharge plasma and oil dynamics. IEEE Trans Plasma Science 20, (1992) 1-12.
- [31] B. Eliasson, U. Kogelschutz; Modelling and applications of silent discharge plasma. IEEE Trans. Plasma Science 19, (1991) 309-323.

3.6.4 Glimontladingen

- [32] I.E. Kanter; Research and development for advanced combined NO_x/SO₂ removal systems. Final report for DOE, DE 86015187 (1986).
- [33] A. Czeznichowski and H. Leseuz; Low temperature incineration of some volatile organic compounds by gliding discharges under atmospheric pressure. Proc. 10th Int. Symp on Plasma Chemistry, Bochum 1991, paper 3.2-1.
- [34] A. Czernikowski et. al; Plasma assisted gas or steam depollution from hydrogen sulfide or mercaptans. Ibid paper 3.2-22.

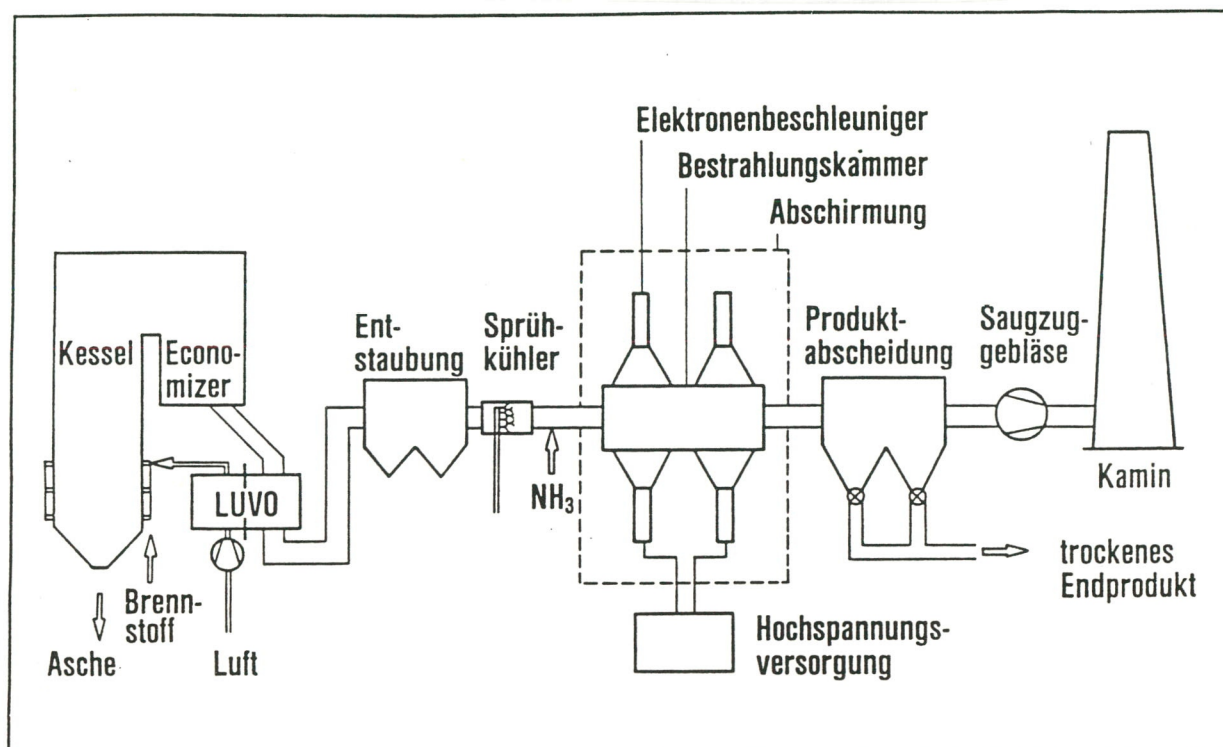
4 Elektronenbestraling

W.R. Rutgers, N.V. KEMA

Gasreiniging door bestraling met bundels hoogenergetische elektronen (300 tot 800 keV) is voor het eerst voorgesteld in het begin van de jaren zeventig door onderzoekers van het JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute) en Tokyo University. Wanneer rookgas, dat voornamelijk bestaat uit stikstof, zuurstof, kooldioxyde en waterdamp, bestraald wordt ontstaan aangeslagen moleculen, radicalen en ionen. Daardoor kan oxydatie van gasvormige verontreinigingen zoals SO₂ en NO door O, OH en HO₂ radicalen op gang komen. Door het zwavelzuur en salpeterzuur dat hierbij ontstaat te neutraliseren met ammoniak ontstaan zoutdeeltjes in het rookgas, die met een elektrostatische (E.S.) precipitator of een doekfilter uit de gasstroom kunnen worden verwijderd. Begin jaren tachtig zijn studies verricht naar het reinigingsrendement en de kosten voor simultane deSO_x/deNO_x. Samen met de toen bestaande kennis uit laboratoriumexperimenten zijn toen plannen ontwikkeld voor pilot-plants, bijvoorbeeld in Indianapolis aan een bruinkoolcentrale (30.000 m³/h) door Ebara Int. Corporation, en in Karlsruhe bij een kolengestookte centrale van Badenwerk AG (20.000 m³/h) zie tabel 4.1 uit [1], figuur 4.1 en 4.2 en figuur 4.3 en [3]. Parallel aan het werk aan dit soort demonstratie-units, waarvan er ook twee (10.000 m³/h) in Japan staan opgesteld (respectievelijk bij een elektriciteitscentrale en bij een staalbedrijf), wordt gewerkt aan theoretische modellering van het proces, aan optimalisering van het proces op laboratoriumschaal en aan de ontwikkeling van betere elektronenversnellers. De opschaling van laboratoriumexperimenten met 1.000 m³/h rookgas naar pilotplants van 20.000 m³/h is goed verlopen. De dosis bij bestraling wordt uitgedrukt in Gray (Gy): 1 Gy = 1 Joule/kg = 100 Rad. Elektronenversnellers leveren MRad's per seconde.

Tabel 4.1 Researchfaciliteiten en pilot-plants op het gebied van rookgasreiniging door elektronenbestraling

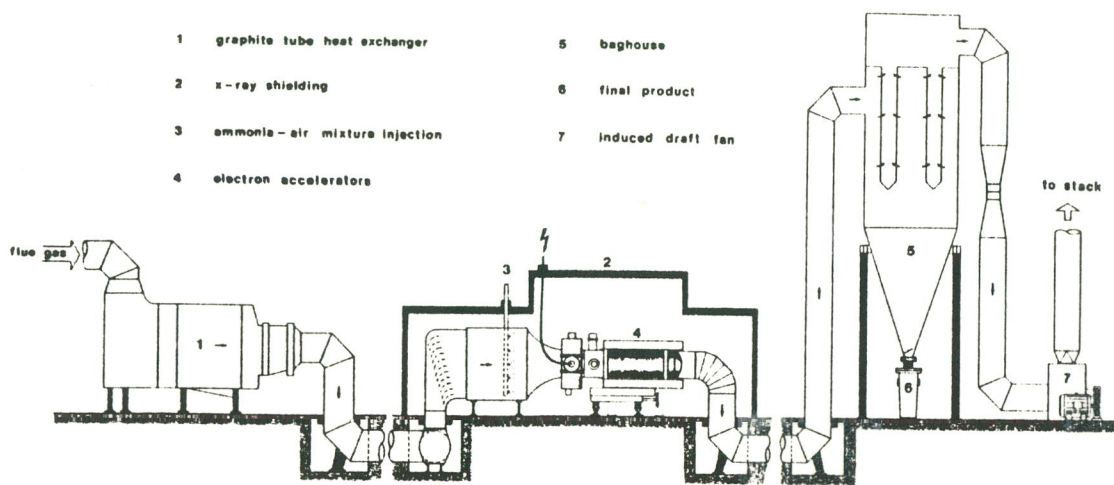
Institution Year	Volume Flow rate	Accelerator	SO ₂ /NO _x raw gas Conc. (ppm)	NH ₃ (ppm)	Temp.
Jaeri 1970 - 71	2,5 l	1,2 kW 2 - 12 MeV linear accel.	1000 / -	-	100 °C
Jaeri 1972 - 74	60 m Nm ³ /h	15 kW Cockroft-Walton	900 / 80	-	90 - 120 °C
Ebara 1974 - 77	1000 Nm ³ /h oil fired	30 kW 300 - 750 kV 50 mA	200 / 240	700	-
Ebara 1977 - 1978	3000 - 10000 Nm ³ /h Iron industry	2 x (10-45 kW) 600 - 750 kV 17 - 60 mA	200 / 180 (1900 / 620)	1 - 1.2	70 - 90 °C
Univ. Tokyo 1981	36 - 84 Nm ³ /h	90 - 120 W 1 MV 90 - 120 μA	900 / -	-	70 - 120 °C
Univ. Tokyo 1981	120 l / h	1,1 MV 100 μA Dynamitron	- / 1000	-	115 °C
Jeeri 1981	1,0 l	1,5 MeV 20 mA	1000 / 5000	-	80 - 150 °C
Ebara Indianapolis 1984	16000 - 32000 Nm ³ /h coal fired	2 x 800 kV 160 kW	1000 / 400	stoich.	66 - 149 °C
Univ. Ka. 1984	100 - 1000 Nm ³ /h gas fired	190 - 220 kV 22 kW	0 - 1000 / 60 - 400	stoich.	75 - 170 °C
KfK Ka. AGATE 1984	60 - 1000 Nm ³ /h crude oil	150 - 300 kV 3,6 kW	400 - 1000 / 300 - 1000	stoich.	60 - 120 °C
Badenwerk Karlsruhe 1985	10000 - 20000 Nm ³ /h coal fired	280 - 300 kV 180 kW	50 - 500 / 300 - 500	stoich.	70 - 100 °C



Figuur 4.1 Vereenvoudigd schema van rookgasreiniging met behulp van elektronenbestraling

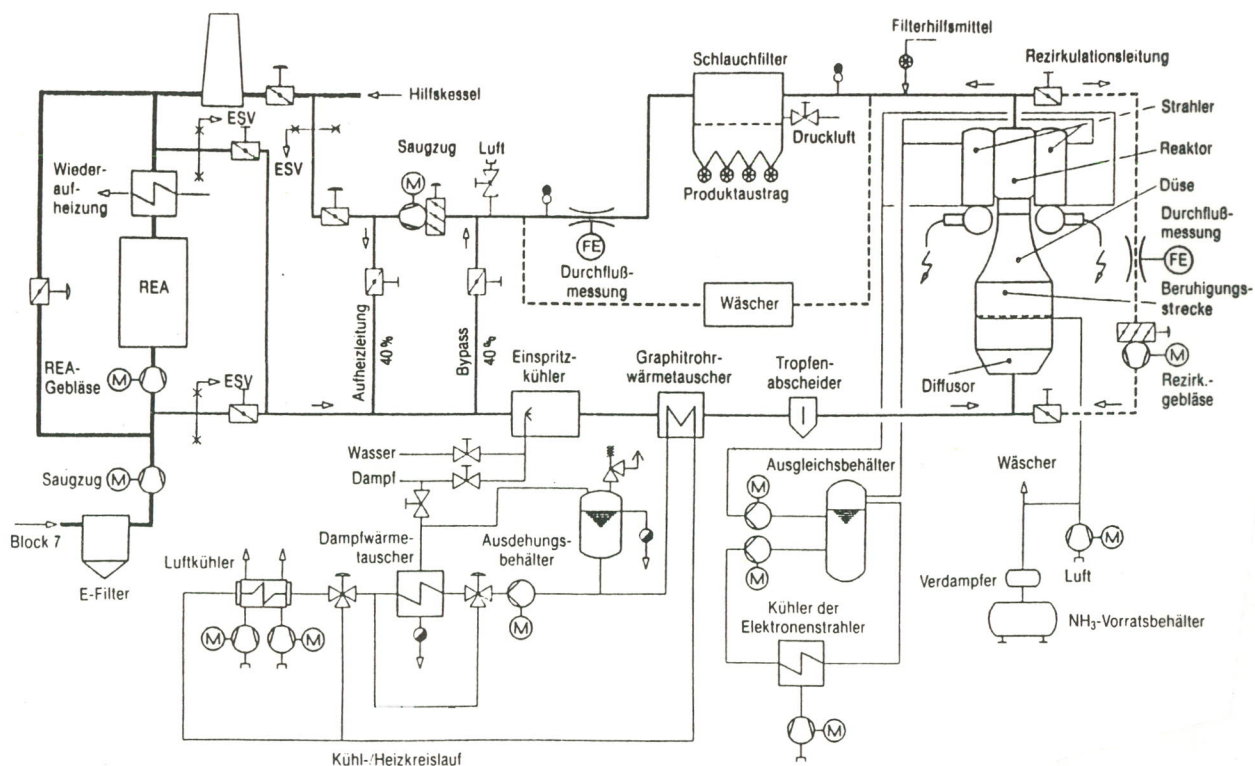
Bij een dosis van 20 kGy is de reductie van NO 95 à 98%. Beneden 10 kGy neemt de NO₂ concentratie toe, boven 10 kGy neemt deze weer af; wel wordt er N₂O gevormd. De N₂O concentratie hangt niet alleen af van de stralingsdosis, maar ook van de SO₂ concentratie. Ook SO₂ kan voor 90% afgescheiden worden maar dan treedt ammoniakslip op.

Het energieverbruik hangt af van de NO_x concentratie. Deze moet laag tot middelhoog zijn, omdat anders de bestralingsdosis (dus het energieverbruik) te hoog wordt. De SO₂ afscheiding hangt niet alleen af van de bestralingsdosis, maar ook van vele andere procesparameters, alsmede van de keuze van een E.S. precipitator of doekfilter voor het afvangen van de zoutdeeltjes. Omdat de elektronenbundel in vacuüm wordt opgewekt is het nodig een venster te installeren tussen versneller en rookgas. Hiervoor wordt een titaanfolie gebruikt. Een tweede folie, dat het titaanfolie beschermt tegen corrosief rookgas, reduceert de transmissie van de bundel.



Flue gas stream (st.m ³ /h)	: 5,000 - 20,000
Process temperature (°C)	: 65 - 100
Flue gas humidity (vol. %)	: 5 - 15
Number of electron accelerators	: 2
Accelerator power (kW)	: 2 x 90
Acceleration voltage (kV)	: 300
Maximum dose at full load (kGy)	: approx. 20
Product filter	: baghouse
Filter area (m ²)	: 490
Filter loading (m ³ /m ² min)	: approx. 1
Material of filter bags	: Dralon-T fabric
Dimensions (l x d x h)	: 6 m x 6 m x 12 m

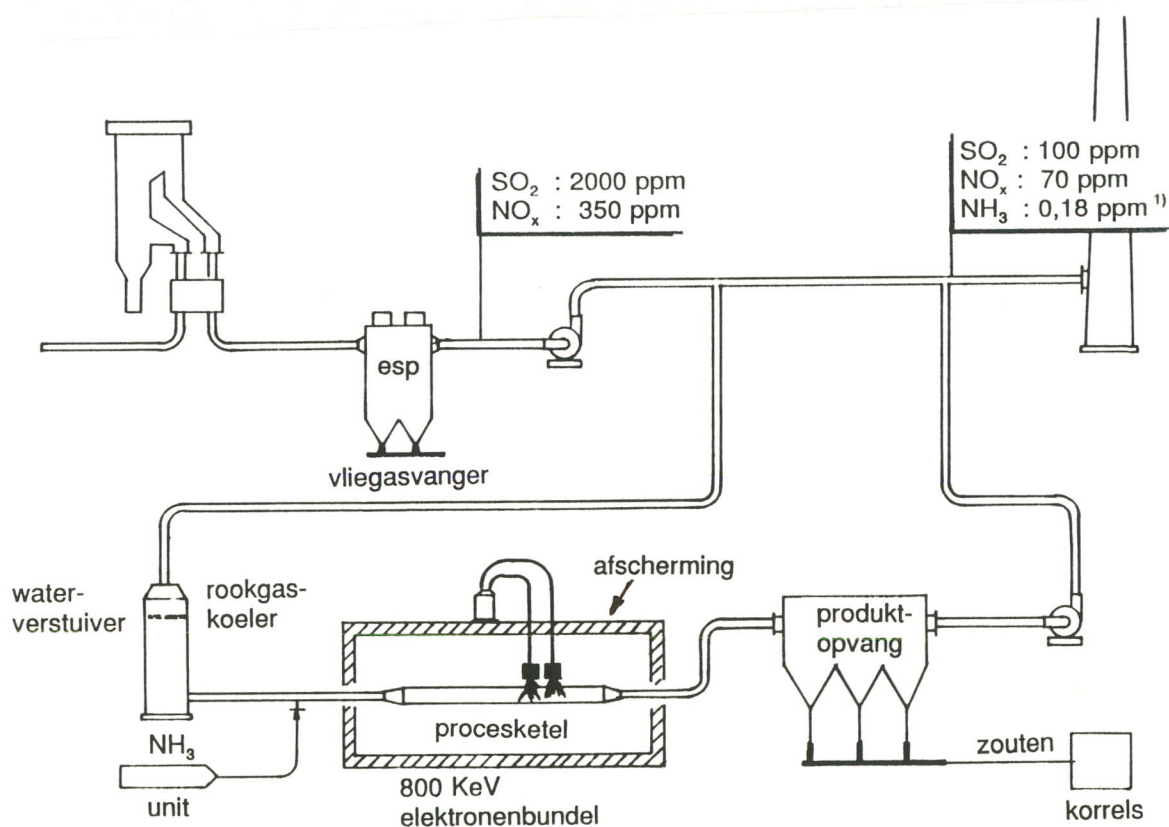
Figuur 4.2 Pilotplant voor rookgasreiniging door elektronenbestraling



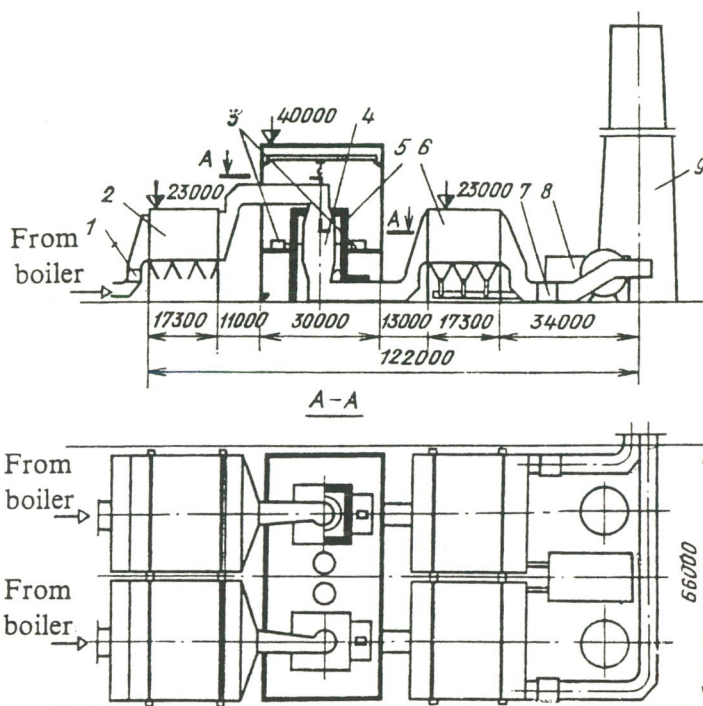
Figuur 4.3 Stroomschema van de pilotplant voor rookgasreiniging door elektronenbestraling te Karlsruhe

Het restproduct bestaat hoofdzakelijk uit ammoniumsulfaat (75%), ammoniumnitraat (20%) en ammoniumchloride (5%). Nitriet komt in sporen voor en sulfiet is in het geheel niet gevonden. Ter bescherming van het doekfilter wordt steenmeel toegevoegd. Het restproduct bevat 50% zouten en is niet brandbaar, terwijl het stof geen explosiegevaar oplevert.

Systeemstudies voor toepassing van de techniek aan 60 MW [2] en 500 MW units zijn uitgevoerd door Energy Sciences Inc., USA, Ebara International Corporation, Japan/USA (figuur 4.4) en in Rusland (figuur 4.5) [5]. De benodigde energie varieert van 2 tot 4% van de elektrische output van de centrale. Dit is vergelijkbaar tot 2x zo hoog als bij conventionele gasreiniging.



Figuur 4.4 Systeemconfiguratie 500 MW_e
Ebara FGT-proces
Energieverbruik: 3,8% = 19 MW_e
resultaat: 95% DeSO_x
80% DeNO_x;
kunstmestkorrels als bijproduct
1) ammoniakslip



Figuur 4.5 Systeem voor rookgasreiniging bij een 500 MW_e elektriciteitscentrale met SO₂ en NO_x-verwijdering door elektronenbestraling [5].
 1. gaskoeler, 2. elektrostatische precipitator voor stof, 3. elektronenversnellers, 4. reactor, 5. betonnen afscheiding, 6. elektrostatische precipitator (voor zouten), 7. ventilator, 8. granulator, 9. schoorsteen

Numerieke modellering van de reactiekinetiek is zowel in Duitsland [6], de USA [7] als in Japan uitgevoerd en is gecompliceerd. Voor de eerste stap, namelijk de produktie van ionen, radicalen en aangeslagen moleculen zijn G-waarden bekend (waarbij G staat voor het aantal moleculaire gebeurtenissen per 100 eV geabsorbeerde stralingsenergie). Voor rookgas past **Pierson** [7] de waarden aan om van NO het verwijderingspercentage in overeenstemming te brengen met experimenten in simpele gasmengsels (zonder H₂O damp). Vervolgens wordt de benodigde energie van deSO_x/deNO_x berekend. Hoewel de gas-chemie goed wordt begrepen, is het uiteindelijke rendement toch groter dan berekend. Dit wordt veroorzaakt door extra reacties in aërosolen. In een thans lopende verfijnder modelberekening worden deze reacties alsnog meegenomen. Vanwege de nog steeds bestaande onzekerheden is het onder andere wenselijk deeltjesgrootteverdelingen te bepalen in proefopstellingen, om te komen tot betere gegevens over reactiesnelheden van heterogene processen¹⁾.

Potapkin [9] uit het Kurchatov Instituut in Moskou voorspelt een G-waarde van meer dan 100 via een kettingproces [8]. In een kleine laboratoriumopstelling is een G-waarde van 50 gehaald voor SO₂ verwijdering in gesimuleerd rookgas bij experimenten in het IVTAN (Instituut voor Hoge Temperaturen).

¹⁾ Processen in vloeistof-gas grenslagen.

4.1 Literatuur

- [1] S. Jordan; Progress in the electron beam treatment of stack gases. Radiat. Phys. Chem. 31, (1988) 21-28.
- [2] N. Frank, S. Hirano and K. Kawamuza; Ebara electron beam process for flue gas cleanup; plant test results and future development. Radiat Phys. Chem. 31, (1988) 57-82.
- [3] W. Baumann, H.R. Pauz; Simultane Rauchgasreinigung durch Elektronenstrahl der Testand AGATE-2. Kernforschungszentrum Karlsruhe KfK4794 (Dez. 91).
- [4] B. Roth et al.; Pilot-Projekt Elektronenstrahl-verfahren (ESV) am Rheinhafen. Dampfkraftwerk Karlsruhe des Badenwerks AG. VGB Kraftwerkstechnik 71, (1991) 396-403.
- [5] Saparov et al.; Reducing pollutant emissions to atmosphere from future coal-fired power stations. Thermal Engin. 37, (1990) 413-416.
- [6] H. Mätzing; Chemical Kinetics of Flue Gas Cleaning by Elektrom Beam. Kernforschungszentrum Karlsruhe KfK4494 (1989).
- [7] J.C. Pierson and D.O. Ham; Removal of SO₂ and NO_x from stack gases by elektron beam irradiation. Radiat. Phys. Chem. 31, (1988) 1-8.
- [8] E.I. Baranchicov et al.; Plasma-catalysis SO₂ oxidation in air. 10th Int. Symp. on plasma chemistry, paper 3.2-4, Bochum 1991.
- [9] B.V. Potapkin et al.; Plasma catalysis SO₂ oxidation in air. 10th Int. Symposium on Plasma Chemistry, Bochum, Duitsland, August 1991 paper 3.2-4.

5 Diëlektrische (rook)gasreiniging

W.J.L. Jansen, N.V. KEMA

Diëlektrische technieken zijn vooral bekend als verwarmingsbron in industriële warmte- en droogprocessen. Het grote voordeel van diëlektrische verwarming is de volumetrische verwarming van materialen. Dit in tegenstelling met conventionele verwarming, waarbij de energie via een overdrachtsmedium aan het oppervlak van het materiaal wordt toegevoerd en door geleiding verder het materiaal in moet dringen.

De per volume-eenheid gegenereerde warmte P_v , in een diëlektricum met verliesfactor ϵ'' , onder invloed van een elektrisch veld $\hat{E}$ (topwaarde), wordt gegeven door de uitdrukking:

$$P_v = \pi f \epsilon_0 \epsilon'' \hat{E}^2 \text{ W/m}^3 \quad (1)$$

waarin f de frequentie en ϵ_0 de elektrische constante is ($\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$).

Diëlektrische technieken vinden vooral toepassing in die gevallen waar de warmtegeleiding van via de oppervlakte toegevoerde energie wordt gehinderd of begrensd is, of in situaties waar geen overdrachtsmedium mogelijk is. Daarnaast worden diëlektrische technieken om kwalitatieve redenen toegepast omdat, door de goede regelbaarheid van elektriciteit, het proces nauwkeurig kan worden beheerst. De uiteindelijke technisch/economische afweging bepaalt of diëlektrisch verwarmen in een industrieel proces wordt ingezet.

De inzet van diëlektrische technieken op milieugebied staat nog aan het begin van zijn ontwikkeling [1, 2]; zij worden sporadisch toegepast voor het reinigen of verwerken van vloeistoffen en vaste stoffen. Voor wat betreft de toepassing op gasvormige materialen geeft de literatuur relatief veel publikaties over ontleding van methaan met microgolven. Ontleding dient, in het algemeen, voor een aantal doeleinden. Voorbeelden zijn het initiëren van chemische reacties, het produceren van diamantlagen, het coaten van oppervlakken en het produceren van waterstof. Een recente toepassing is het vernietigen van gechloreerde koolwaterstoffen, zoals trichloorethaan en trichloorethyleen, in gasvormige toestand, door een microgolfplasma [13]. Een andere toepassing op gassen betreft de inzet van diëlektrische technieken voor gasreiniging.

5.1 Diëlektrisch reinigen van gassen

In een eerste globale afweging van de mogelijkheden van diëlektrische technieken lijkt het een nadeel dat, als gevolg van de volumetrische verwarming, bij diëlektrisch verwarmen in principe de energie-inhoud van het gehele gasmengsel zal toenemen. Een ideale situatie zou ontstaan als schadelijk deeltjes in de gasstroom selectief verwarmd kunnen worden als gevolg van de verschillen in diëlektrische eigenschappen. In dat geval is in hoofdzaak sprake van het verhogen van de thermische energie van het gas met de hoogste verliesfactor. Deze verhoging zal in de meeste gevallen echter toch slechts moeizaam plaatsvinden, omdat de verliesfactor van gassen meestal laag is. De energie-inhoud van microgolven is te laag om direct moleculen aan te slaan zodat radicalen alleen thermisch kunnen worden gevormd.

Een andere situatie ontstaat als de energie zo hoog wordt opgevoerd dat plaatselijk doorslag kan ontstaan en een plasma wordt gevormd. Diëlektrisch verwarmen is een van de manieren om een plasma te genereren.

Diëlektrische technieken kunnen op een aantal manieren worden ingezet binnen het kader van gasreiniging. Op basis van de resultaten van een literatuuronderzoek kunnen vijf toepassingsgebieden worden aangegeven:

- het verwijderen van SO_2 en NO_x uit rookgassen (5.1.1)
- terugwinnen van zwavel na rookgasreiniging (5.1.2)
- verbranden van afgevangen roet uit uitlaatgassen (5.1.3)
- het drogen van gasstromen na ontzwavelen (5.1.4)
- regeneratie van filters uit rookgaskanalen (5.1.5)

Alleen in het eerste geval wordt diëlektrische energie, via een plasma, rechtstreeks toegepast om gasstromen te reinigen. In de overige gevallen wordt diëlektrisch verwarmen indirect toegepast, als voor- of nabehandeling van bestanddelen die aanleiding geven tot rookgasverontreiniging of ten behoeve van regeneratie van filtermateriaal dat afvalstoffen van rookgassen bevat.

5.1.1 Het verwijderen van SO_2 en NO_x uit rookgassen

In de hieronder beschreven methode wordt een microgolfflasma gebruikt om SO_2 en NO_x gehalten in rookgassen te reduceren. De methode is, evenals bij de reinigingstechnieken gebaseerd op ontladingen (hoofdstuk 3), gebaseerd op het vormen van radicalen. In een microgolf trilholte wordt een dusdanig hoge veldsterkte gegenereerd dat doorslag optreedt. Hierdoor wordt een plasma gevormd, dat de nodige radicalen bevat om de chemische omzetting van SO_2 en NO_x te bewerkstelligen.

Door een juiste vorm van de trilholte en bij toevoer van voldoende vermogen kunnen extreem hoge energiedichtheden worden bereikt. Een hoge energiedichtheid is ook noodzakelijk om de ontlading zelf in stand te houden en om, onder atmosferische omstandigheden, voldoende versnelling van de elektronen te verkrijgen om radicalen te kunnen produceren.

In [3] wordt bericht over de experimentele resultaten met microgolfflasma's voor het reinigen van rookgassen. Figuur 5.1 geeft een beeld van de proefopstelling.

Figuur 5.1 Laboratoriumopstelling microgolfreinigen van rookgassen [3]

De microgolfenergie wordt via een afstemeenheid (triple stub tuner) naar een microgolfrilholte gevoerd. Het kwartsraam dient om de rookgassenstroom te blokkeren, en tevens ter bescherming van de magnetron tegen het plasma. De uitkoppeling (bi-directional coupler) dient om het gereflecteerde vermogen te meten; met de afstemeenheid wordt dit vermogen geminimaliseerd. In de trilholte wordt het plasma opgewekt. Het vermogen van de magnetron was 6 kW.

Proeven waarbij het plasma werd gegenereerd in het rookgaskanaal zelf hadden een teleurstellend resultaat. De concentratie SO_2 nam nauwelijks af, terwijl die van NO_x zelfs toenam. Dit werd geweten aan het feit dat de omzetting van SO_2 bij hoge temperatuur onderdrukt wordt, terwijl de reacties die SO_2 vormen juist worden versterkt. De toenemende concentratie NO_x werd eveneens geweten aan de hoge temperatuur van het plasma.

Het plasma werd daarom, als volgende stap, in een apart kanaal, in een kleiner volume gegenereerd bij temperaturen boven 3000°C , in een stoomomgeving waaraan verschillende soorten gas werden toegevoegd. Het gegenereerde plasma werd geïnjecteerd in het rookgas. Het mixen van deze plasmastroom met de rookgassenstroom kost een zekere tijd, waarin het aantal radicalen door recombinatie afneemt. Van verschillende gebruikte gassen gaf ammonia zowel een aanzienlijke reductie van het SO_2 gehalte als van het NO_x gehalte. De SO_2 concentratie werd overigens ook iets gereduceerd, zonder een plasmaontlading. De reductie van het NO_x -gehalte door ammonia werd gedeeltelijk weer teniet gedaan doordat in het gebied waar rookgassen en het plasma worden gemengd weer nieuw NO_x werd gevormd. Hierdoor viel de netto NO_x -reductie gezien over het hele proces tegen. Toevoeging van acetylene aan de stoom in het plasmakanaal leidde tot de beste resultaten voor wat betreft de reductie van NO_x . Acetyleen produceerde de langst levende radicalen; met acetyleen konden zeer lage NO_x -gehalten worden bereikt.

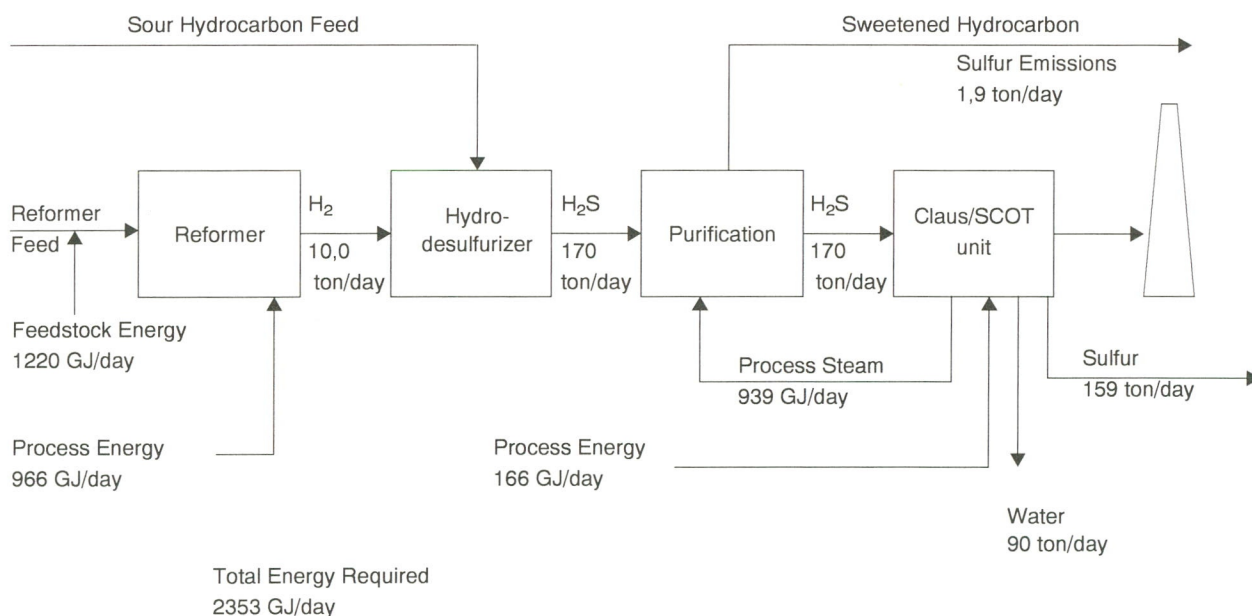
De ontwikkeling van dit proces is in een laboratoriumfase; het zoeken naar een geschikt stoom/gas mengsel wordt als de meest belovende weg gezien om tot SO₂ en NO_x reductie te komen.

Doordat deze methode zich nog in een onderzoekstadium bevindt, kunnen energieverbruik en investeringskosten niet worden gegeven.

5.1.2 Terugwinnen van zwavel na rookgasreiniging

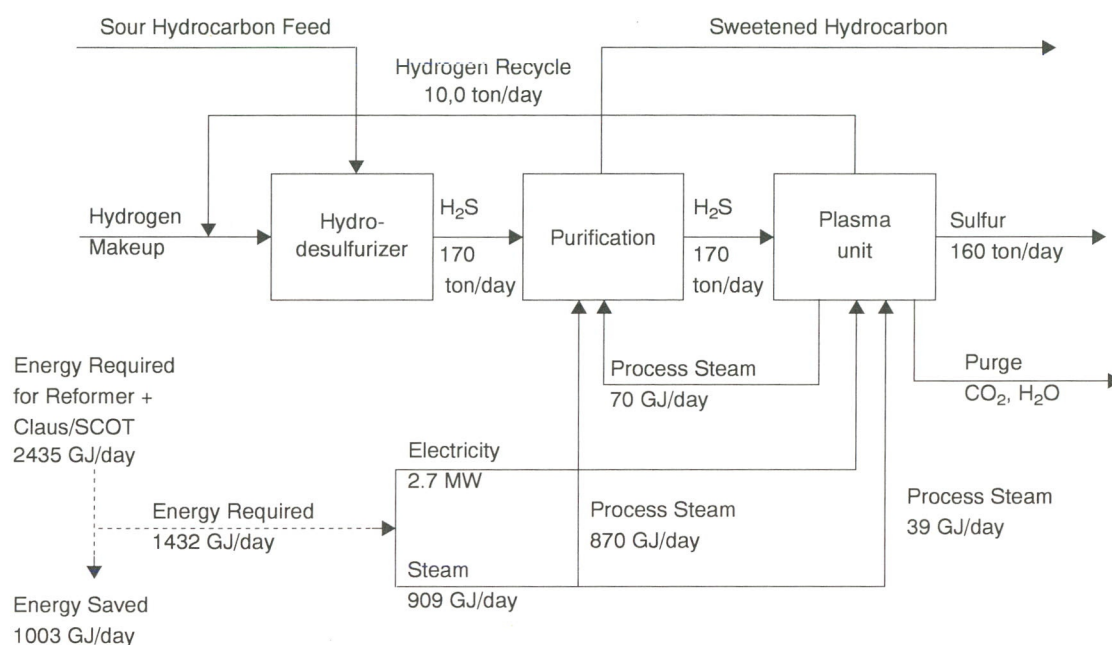
In de hieronder beschreven toepassing wordt een microgolfplasma gebruikt om zwavel en waterstof terug te winnen na rookgasreinigen met waterstof. Indirect wordt hiermee de emissie van zwavel verkleind, omdat nagenoeg alle zwavel wordt teruggewonnen, terwijl in het gebruikelijke proces een deel van de zwavel wordt uitgestoten.

Een bron van zwavelemissies is de petrochemische industrie. Koolwaterstoffen als natuurlijke gassen, en als afgas van oliaffinaderijen, bevatten zwavel. Deze gassen worden ontwaveld door de zwavel te laten reageren met waterstof tot zwavelwaterstofgas (waterstofsulfide, H₂S). Dit zwavelwaterstofgas wordt in een volgend chemisch proces, het zogenoemde Claus procédé, omgezet in zwavel en water. Hierbij wordt 98,8% van de zwavel teruggewonnen; 1,2% wordt via de schoorsteen in de atmosfeer geloosd (figuur 5.2).



Figuur 5.2 Energie- en massabalans voor het Claus/SCOT procédé [4]

Met een microgolflasma is het mogelijk, 100% van de zwavel uit het zwavelwaterstofgas terug te winnen door dissociatie van het H_2S . Gelijktijdig wordt daarbij ook de waterstof teruggewonnen, die vervolgens weer kan worden gebruikt bij het ontzwavelen van de koolwaterstoffen. De verwachting is dat in een bedrijfssituatie minder zwavel wordt uitgestoten in vergelijking met het huidige Claus-procédé [4].



Figuur 5.3 Energie- en massabalans voor het microgolffprocédé [4]

Een andere mogelijkheid is de gecombineerde dissociatie van H_2S met CO_2 . Dit procédé levert zwavel, zwaveloxyde, waterstof en koolmonoxyde op [4, 5]. Beide hierboven beschreven processen bevinden zich in een onderzoekfase.

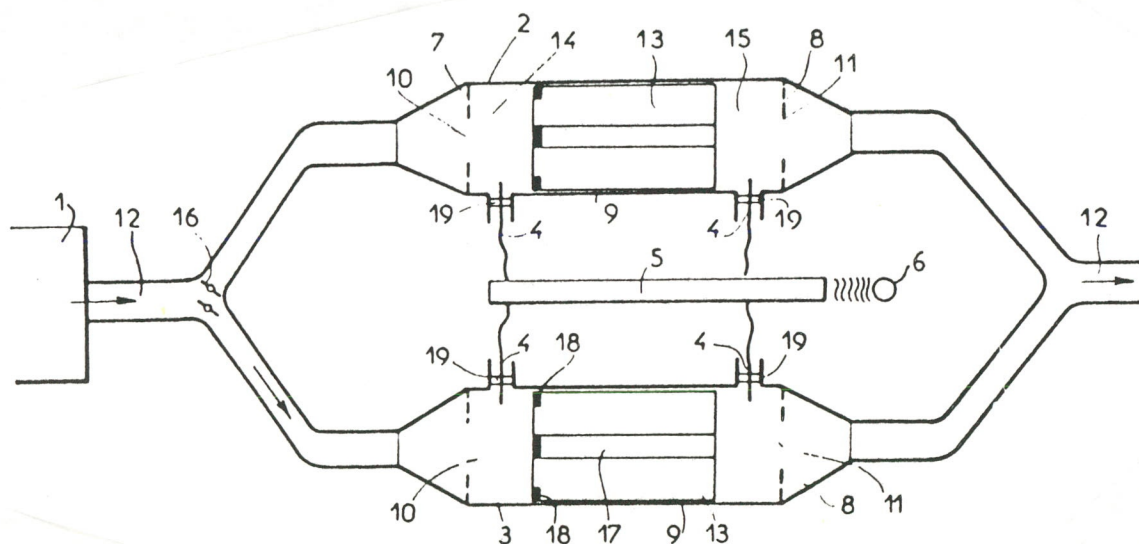
De figuren 5.2 en 5.3 geven een beeld van het energieverbruik voor de twee processen. De energie- en massabalans van figuur 5.3 werd via een bureaustudie bepaald op basis van recente rendementsgegevens van de verschillende procesonderdelen.

5.1.3 Verwijderen en afvangen

Verbrandingsmotoren produceren, naast verbrandingsgassen, onder andere roet. Filteren is een methode om de roetdeeltjes uit de uitlaatgassen te verwijderen. Het filter zal na verloop van tijd dichtslibben met de afgevangen roetdeeltjes; deze roetaanslag moet regelmatig worden verwijderd om de effectiviteit van het filter te behouden.

Roetdeeltjes zijn geleidend en hebben daardoor een hoge diëlektrische verliesfactor. Verwijderen van de roetdeeltjes kan daarom geschieden via microgolven door het roet dusdanig te verhitten dat het verbrandt. Dit verbranden kan zeer efficiënt plaatsvinden als het filtermateriaal zelf een lage diëlektrische constante heeft. Het verbranden van het roet vereist hoge temperaturen (500 à 600 °C).

In [6] en [7] wordt een methode beschreven om het roet in het filtermateriaal te verbranden. Om de vereiste hoge veldsterkte voor verbranden te verkrijgen wordt als microgolfoven een cilindrische trilholte gekozen. Vooral in het centrum zal een relatief hoge veldsterkte heersen, die tot inhomogene verbranding kan leiden. Een binnencilinder van het filtermateriaal is om die reden verwijderd en aan een zijde afgedicht, terwijl ook wordt verhinderd dat de gasstroom dicht aan de buitenkant van de cilinder in het filter terechtkomt. De verbrandingsgassen worden op deze wijze geconcentreerd in het middengedeelte van het cilindrische filtermateriaal en er wordt een homogene verbranding van het roet bewerkstelligd. Tevens wordt afkoeling naar de buitenwand tegengegaan. Dit laatste wordt mede bevorderd door een isolerende laag. Voor het reinigen moet de gasstroom worden onderbroken of omgeleid langs een bypass, die op zijn beurt ook van een filter kan worden voorzien; de filters worden dan intermitterend bedreven. Figuur 5.4 geeft een beeld van een dergelijke systeem.



Figuur 5.4 Filtersysteem met naverbranding van roet [6].

De uitlaatgassen van de motor (1) worden afwisselend, gestuurd door klep (16), door trilholte (2) of trilholte (3) geleid. De microgolvenenergie van bron (6) wordt via een golfpijp (5) naar de antennes (4) gestuurd, die de energie overdragen aan de trilholten, gevormd door de vlakken (7), (8) en (9). In de trilholte bevindt zich het filtermateriaal (13), dat van binnen hol is (17). Door de openingen (10) en de diameterbeperking (18) wordt de gasstroom naar een gedeelte van het filtermateriaal gedwongen waar de veldsterkte min of meer homogeen is, zodat bij bekrachtiging van de magnetron een gelijkmatige verbranding optreedt.

In een krantebericht [8] werd vermeld dat aan de Loughborough-universiteit een prototype van een dergelijk systeem is ontwikkeld. In het prototype kon met microgolven 90% van het roet worden verwijderd [9].

Microgolven worden in deze methode indirect gebruikt om, tijdens bedrijf, filters te regenereren door de gevormde roetaanslag te verbranden. De methode bevindt zich in een prototypefase; vermogens en de energiebehoefte van het systeem worden niet gegeven.

In 3.2 wordt een gecompliceerder methode beschreven waarmee, behalve roet, ook NO_x en SO_2 uit de uitlaatgassen van dieselmotoren kan worden verwijderd.

5.1.4 Drogen van rookgassen

Rookgas bevat, na nat ontwavelen, vloeistof in druppelvorm waarin vaste stoffen zijn opgelost. Deze vaste stoffen: gips, zouten, roetdeeltjes, calciumoxyde, calciumcarbonaat en calciumsulfide, geven aanleiding tot vorming van ketelsteen, en tot corrosie. Normaal wordt dit rookgas gedroogd door het te mengen met hete gassen, verwarmd door stoom, heet water of hete lucht. Voor een goede overdracht van energie worden beide gasstromen geforceerd gemengd. Vooral in de menger treedt ketelsteenvorming en corrosie op.

Via stralingswarmte van de juiste golflengte wordt minder energie gebruikt en wordt selectief verwarmd; bovendien kan de mengfase achterwege worden gelaten. De stralingsbronnen kunnen op verschillende manieren worden gevormd en kunnen worden verwarmd door oververhitte stoom, water en hete rookgassen, door weerstandsverwarming of door inductieve verwarming. In dit verband kunnen ook microgolfantennes als stralingsbron worden toegepast. De stralingsbronnen kunnen in rookgaskanalen worden opgenomen. De energie kan rechtstreeks aan de rookgassen worden overgedragen of gebruikt worden om een substraat te verwarmen waar de rookgassen doorheen worden geleid. Substraten kunnen worden gevormd uit metalen, metaaloxiden, steen of keramiek. Voor microgolf-toepassingen dienen deze substraten een voldoende hoge verliesfactor te bezitten. Als voordelen van deze droogmethoden worden genoemd

- de lage investeringskosten voor de droger;
- de menger is niet meer noodzakelijk;
- het risico van ketelsteenvorming wordt verlaagd [10].

Diëlektrisch verwarmen wordt daarbij genoemd als een van de mogelijke verwarmingsmethoden. Vergeleken met eenvoudige bronnen zoals hierboven beschreven lijken microgolftechnieken niet in aanmerking te komen, tenzij er duidelijke nadelen aan de overige methoden kleven die door toepassing van microgolfenergie kunnen worden vermeden. Die blijken echter niet uit [10]; de praktisch implementeerbaarheid van deze optie is dus twijfelachtig.

5.1.5 Regeneratie van filters

Gassen kunnen worden gereinigd door de verontreinigingen te absorberen in filters. Filters moeten na verloop van tijd worden vervangen. Indien het geadsorbeerde materiaal, het adsorbaat, teruggewonnen moet worden dan ontstaat er een probleem omdat het de functie van de adsorbent is het adsorbaat in te vangen. Hoe effectiever de adsorbent des te moeilijker de regeneratie van het adsorbaat. Regeneratie gaat in het algemeen gepaard met hoge temperaturen, lange

regeneratietijden en grote hoeveelheden spoelgas om het adsorbaat af te voeren. Het gas dient tevens als medium voor de overdracht van energie. Het warmteverbruik is over het algemeen hoog, omdat niet alleen het adsorbaat maar ook de adsorbent, alsmede grote hoeveelheden spoelgas moeten worden verwarmd. Door die grote hoeveelheden spoelgas wordt de absorbaatconcentratie in het gas laag. De regeneratietemperatuur is aan een limiet gebonden in verband met degeneratie van adsorbaat of adsorbent, zodat versnelling van het proces door temperatuurverhoging gelimiteerd is.

Diëlektrische verwarming kan worden ingezet om het filter te regenereren. Dit kan in principe de volgende voordelen met zich meebrengen. Doordat het filter zelf wordt verwarmd zijn hoge energiedichtheden mogelijk, waardoor het proces wordt versneld. Doordat het spoelgas niet hoeft te worden verwarmd, maar alleen het filter, kan energie worden bespaard. Een zeer gunstige situatie ontstaat als alleen het adsorbaat gevoelig is voor diëlektrische verwarming; de warmte wordt dan zeer selectief toegevoerd. Bij diëlektrisch regenereren behoeft een spoelgas in theorie niet te worden gebruikt; in praktijk is dat echter wel wenselijk, om het ge-adsorbeerde materiaal af te voeren en daarmee het regeneratieproces te versnellen.

De methode kan worden gebruikt om SO_2 en andere verontreinigen uit rookgasfilters te verwijderen. Op laboratoriumschaal werd het verwijderen van SO_2 uitgevoerd door dit te laten reageren met een waterige oplossing van ZnO , waarbij water en ZnSO_3 worden gevormd. De oplossing werd daarna diëlektrisch verwarmd, waarbij puur SO_2 -gas vrij kwam. De methode kan dus gebruikt worden om het SO_2 te scheiden van de rookgassen en in een later stadium weer terug te winnen voor verdere behandeling [11]. Het proces bevindt zich in een fase van vooronderzoek.

5.2 Kostenschatting

Technisch/economische aspecten bepalen de haalbaarheid van een installatie. Voor een deel kunnen technische aspecten in geld worden vertaald, voor een ander deel is daarvoor alleen een schatting te geven, bijvoorbeeld als het gaat om kwaliteitsaspecten. Een eerste schatting van de economische haalbaarheid kan worden uitgevoerd op basis van procesgegevens. De productiecapaciteit, de warmtecapaciteit van het produkt en de gewenste temperatuurverhoging bepalen de vermogensbehoefte van een verwarmingsproces. Dit vermogen geeft een eerste indruk van de kosten, uitgaande van bedragen van circa f 3500/kW voor radiofrequente installaties (27 MHz). Bij microgolffapparatuur kan men uitgaan van f 4500/kW voor 900 MHz en f 5500/kW voor 2450 MHz installaties met een vermogen van enkele tientallen kW [12]. Dit zijn installatiekosten voor de kale generator zonder allerlei bijkomende onderdelen als lopende banden, luchtcirculatie, temperatuurregelsystemen en dergelijke. Voor een 2,7 MW microgolfinstallatie voor het terugwinnen van zwavel (figuur 5.3) zouden de kosten dan ca. f 7 mln bedragen. Dit is een globale schatting; microgolfinstallaties met een dergelijk vermogen zijn nog niet gebouwd. De bedrijfskosten voor wat betreft het elektrische deel van de installatie (afschrijving en kosten elektriciteit) worden geschat op ongeveer f 150/ton zwavel.

5.3 Literatuur

- [1] H. Boot, W.J.L. Jansen, E. Mot, H.J. Munter; Diëlektrische toepassingen in de milieutechnologie. TNO-rapport 90-250, nr 8722-19624, januari 1991.
- [2] H. Boot, W.J.L. Jansen, E. Mot, H.J. Munter; Diëlektrische methoden in de milieutechnologie. Microgolven scheiden afvalstoffen door selectieve verwarming. PT PolyTechnisch Tijdschrift Milieu. Mei 1991, nummer 5, p. 50-53.
- [3] Helfritsch, D.J., P.L. Feldman; Microwave energy for SO₂ and NO_x removal from flue gas. Cottrell Environmental Sciences. P.C. Efthimion, D.H. McNeill, Efthimion Enterprises. For U.S. Department of Energy, 1987.
- [4] Harkness, J.B.L., Gorski, A.J., Daniels, E.J.; Hydrogen sulfide waste treatment by microwave plasma dissociation. Proc. Intersoc. Energy Convers. Eng. Conf. 25th volume, 6, (1990) 197-202.
- [5] Strelkova M.I. et al.; Plasmachemical dissociation of H₂S in mixture with CO₂. 10th international symposium on plasma chemistry, Paper 1.5-11, Bochum, 1991.
- [6] Ollivon, M.; Renevot, G.; Berteuad; A. Regie Nationale des Usines Renault. Dispositif d'élimination par micro-ondes des particules contenues dans les gaz d'échappement de moteurs thermiques. Europees patent Nr 0 327 439 A1.
- [7] Ollivon, M.; Regie Nationale des Usines Renault. Dispositif d'élimination par micro-ondes des particules contenues dans les gaz d'échappement de moteurs thermiques. Frans Patent Nr Publ, 2 626 783; Patent Nr 88 01341
- [8] Volkskrant, 21-3-1992, Dieselmotor schoner door magnetron.
- [9] G. Coghlan, A.; Microwave cook the soot out of diesel exhausts. New Scientist, 14 March 1992, p. 23.
- [10] Adrian, F.; Hannes, K.; Than, K.; Wehrum, A; Method of, and device for, drying flowing gases. STEAG Aktiengesellschaft, Duitsland. UK patent Application GB 2 091 113 A, 1991.
- [11] E.J. Mezey; Absorbent regeneration and gas separation utilizing dielectric heating. Batelle development corporation, USA. International Publication Number WO 79/00251, 1979.
- [12] W.J.L. Jansen; Diëlektrisch drogen en verwarmen, nieuwe procesmogelijkheden voor de voedingsmiddelenindustrie. VMT, 6 februari 1992 nr. 3, p 14-17.
- [13] T.R. Krause, J.E. Helt; Chemical Detoxification of Trichloroethylene and 1,1,1-Trichloroethane in a Microwave discharge Plasma Reactor at Atmospheric pressure. Conference 'Emerging Technologies for Hazardous Waste Treatment, American Chemical Society, Atlanta, October 1-3, 1991.

6 UV-Straling

H.J.G. Kok, IMET-TNO

Het is bekend dat door middel van UV-straling, in combinatie met een oxydatiemiddel, vele organische verbindingen (ook gehalogeneerde) in principe volledig kunnen worden geoxydeerd tot CO₂, H₂O en zure anorganische verbindingen. Door de combinatie van UV-straling met een sterke oxydator zoals ozon, wordt de afbraaksnelheid van veel verbindingen aanzienlijk verhoogd ten opzichte van het gebruik van UV of ozon alléén.

Onder niet-optimale omstandigheden zal echter onvolledige oxydatie optreden, waarbij de vorming van schadelijke bij- of tussenproducten niet is uitgesloten. Nabehandeling van de procesgasstroom kan dan noodzakelijk zijn. Veelal zullen de gevormde oxydatieproducten een dergelijke nabehandeling echter vereenvoudigen of het rendement ervan gunstig beïnvloeden, bijvoorbeeld omdat gedeeltelijk geoxydeerde verbindingen vaak beter kunnen worden uitgewassen. Bij dioxinehoudende gasstromen kan een UV-behandeling, leidend tot een onvolledige oxydatie, reeds voldoende zijn omdat daardoor mogelijk de toxiciteit van de afgasstroom vermindert.

Op niet-industriële schaal is reeds met diverse UV/ozon processen voor de afbraak van onder andere gechloreerde koolwaterstoffen ervaring opgedaan.

UV-bestraling van het waswater van gaswassers, waaraan ozon is toegevoegd, kan stoffen als waterstofsulfide, dimethyldi- en trisulfide en chloorfenolen vrijwel volledig vernietigen [8].

Bij laboratoriumproeven zijn hoge verwijderingsrendementen behaald bij water dat verontreinigd was met (onder andere gechloreerde) koolwaterstoffen. Over de mogelijkheden in de gasfase is echter relatief weinig bekend. Aangaande de reactiemechanismen, de benodigde verblijftijden en de daaruit volgende dimensionering en kostenaspecten bestaan grote verschillen tussen gas- en waterfase. De samenstelling van de reactanten in de gasfase wijkt af van die in de waterfase; belangrijker is, dat de verblijftijden in de gasfase waarschijnlijk langer moeten zijn, omdat de dichtheid in de gasfase een factor 1000 lager is. Anderzijds zijn er aanwijzingen, dat deze techniek toch reeds bij verblijftijden van enkele seconden perspectieven biedt, bij onder andere geurverwijdering en rookgasreiniging.

Uitgangspunt is daarbij in het algemeen, dat de concentratie van de verontreinigingen laag is, bijvoorbeeld tot 0,5 g/Nm³. Bij hogere concentraties zijn andere technieken, zoals naverbranden bij organische verontreinigingen, goedkoper.

6.1 UV-stralers

6.1.1 Ultraviolette straling

Ultraviolette straling is elektromagnetische straling met een golflengte korter dan die van zichtbaar licht, maar langer dan van röntgenstraling. Het golflengtegebied van de UV-straling is 100 nm tot 400 nm¹⁾; het wordt onderverdeeld in drie golflengtebereiken:

¹⁾ 1 nm = 10⁻⁹ m

- UV-A (lange golf) 315 - 400 nm
- UV-B (midden golf) 280 - 315 nm
- UV-C (korte golf) 100 - 280 nm

De energie-inhoud van de UV-straling neemt toe naarmate de golflengte korter wordt.

De belangrijkste soorten lampen, die UV-straling kunnen produceren zijn lampen gevuld met kwik (Hg), kwik en metaalhalide toevoeging, of xenon.

De twee belangrijkste uitvoeringen zijn [14]:

- de lage-druk Hg-lamp met een druk van ca. 0,4 Pa; de UV-straling vindt hoofdzakelijk plaats bij 254 nm; bovendien is er een sterke emissie (ca. 15%) bij 185 nm.
- de midden-druk Hg-lamp (ook wel 'hoge-druk' genoemd) met een druk van 10 tot 1000 kPa; deze lamp geeft UV-straling vele discrete golflengten in het gebied tussen 200 nm en 600 nm.

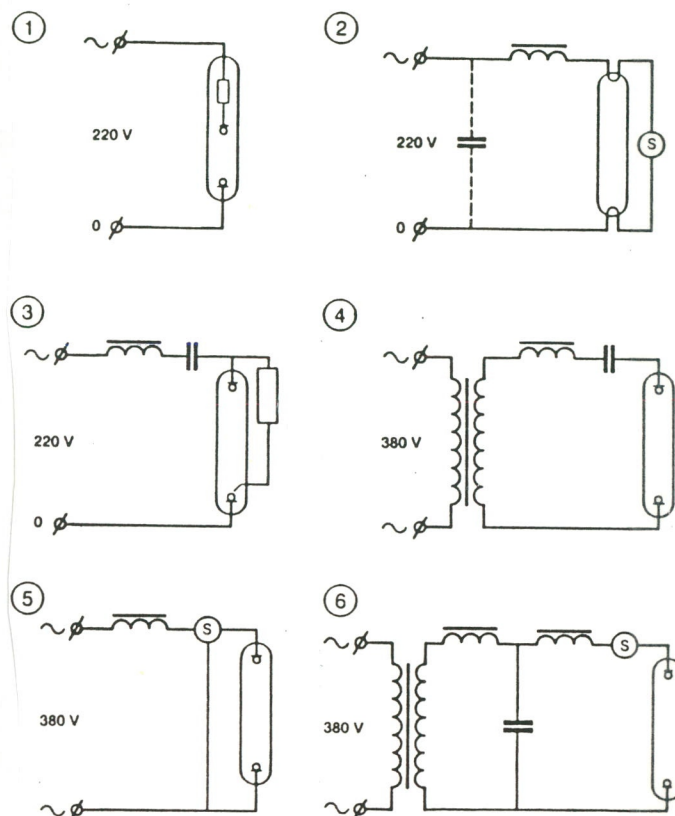
Een nieuwe ontwikkeling is de dielectric-barrier discharge UV-straler met xenon-gasvulling. Deze heeft een UV-C piek bij 172 nm (7,2 eV) en een energie-efficiëntie van bijna 10% voor deze korte-golf straling [13].

Door toepassing van verschillende omhulsels kan het uitgezonden golflengtebereik enigszins worden aangepast, doordat ongewenste golflengten daarmee worden uitgefilterd. Om bijvoorbeeld te voorkómen, dat ozon wordt gevormd kan straling met golflengten korter dan 200 nm worden uitgefilterd door gebruik te maken van speciaal kwartsglas [15].

6.1.2 Elektrische voorzieningen en opgenomen vermogen

Bij UV-stralers moet een smoorspoel in het aansluitcircuit worden opgenomen om te voorkómen dat de elektronenstroom door de buis blijft toenemen (zie figuur 6.1 voor enkele aansluitschema's). Bovendien vergen gasontladingslampen vaak een hogere spanning dan de netspanning (tot 30 kV). Het aansluiten en de vermogensregeling van het vermogen van een gasontladingslamp is daarom vaak gecompliceerder dan bij een normale gloeilamp.

Het opgenomen vermogen bedraagt bij de lage-druk UV-lamp ca. 1 W/cm en bij de midden-druk lamp ca. 100 W/cm.



Figuur 6.1 Principeschema van een aantal UV-stralers:

1. low pressure mercury glow-discharge and blended light
 2. low pressure mercury arc discharge
 3. high-pressure mercury short arc
 4. high-pressure mercury long arc
 5. metal halide
 6. pulsed xenon
- (Documentatie Philips)

6.1.3 Bedrijfsomstandigheden en UV-rendement

Een lage-druk UV-lamp wordt zonder koeling toegepast; de optimale bedrijfstemperatuur (van het omhulsel van de lamp) is 40 tot 50 °C. Bij een midden-druk UV-lamp moet de bedrijfstemperatuur tussen 500 °C en 900 °C liggen [15].

De stralingsintensiteit per cm lamp is bij een lage-druk lamp kleiner dan bij een midden-druk lamp; het UV-rendement van een lage-druk lamp is echter een factor 2 tot 3 hoger (respectievelijk 30 à 40% en 10 à 15%).

6.1.4 Veiligheidsaspecten

Blootstelling aan UV-straling brengt gezondheidsrisico's met zich mee. De directe inwerking van UV-straling op de huid kan onder andere tot huidkanker leiden. Verder kunnen door ozon irritaties van ogen en ademhalingsorganen ontstaan. De aanbevolen maximale ozonconcentratie van ingeademde lucht bedraagt ca. 5 ppm (0,15 mg/m³) [14].

6.2 Chemische effecten van UV-straling

In een fotolyseproces (ontleding met behulp van fotonen) onderscheidt men directe en indirecte fotolyse. Bij directe fotolyse wordt door een verbinding voldoende lichtenergie geabsorbeerd om een moleculaire binding te verbreken. Bij indirecte fotolyse wordt de moleculaire binding verbroken door een door het UV-licht geactiveerde reactant, zoals bijvoorbeeld ozon, waterstofperoxyde, OH'-radicalen etc.; het UV-licht splijt het molecuul van een oxyderende reactant, waarbij vrije radicalen worden gevormd. Het vrije radicaal werkt als intermediair bij overdracht van energie naar de betreffende chemische binding, die op zich door UV-licht geactiveerd kan zijn.

Om in staat te zijn met UV-straling chemische bindingen te verbreken moet onder andere voldaan worden aan de volgende voorwaarden [1]:

- de straling moet geabsorbeerd kunnen worden door de betreffende verbinding;
- de straling moet van de juiste golflengte zijn en van voldoende intensiteit;
- teneinde het proces te versnellen moet een waterstofdonor aanwezig zijn om de gevormde radicalen op te vangen.

6.2.1 Benodigde golflengte

De maximale golflengte, die in staat is een bepaalde chemische band te verbreken en aldus radicalen te vormen, is vermeld in tabel 6.1. Zoals op fysische gronden te verwachten is kan men in deze tabel zien, dat straling met een kleinere golflengte meer chemische bindingen kan verbreken. In de tabel is het effect van twee specifieke golflengten opgenomen, namelijk 185 nm en 254 nm. Dit zijn de golflengten die uitgezonden worden door een veel gebruikte lage-druk kwiklamp, waarmee redelijk efficiënt elektrische energie omgezet wordt in kortgolvlige UV-straling.

Uit tabel 6.1 kan worden afgeleid, dat zelfs met een golflengte van 185 nm de volgende chemische bindingen niet te verbreken zijn: C $\equiv$ C, C $\equiv$ N, C = O (aldehyden en ketonen), C = S, N = O.

Anderzijds blijkt, dat de volgende chemische bindingen (eventueel ongewenst) kunnen worden verbroken: N - O, O - O (zuurstof), O - H (water).

In dit verband is het van speciaal belang dat in vochtige lucht met 185 nm fotonen, dus ook O'- en OH'-radicalen worden gevormd. Doordat zuurstofradicalen (O') in lucht vrij snel reageren met zuurstof ontstaat (het giftige) ozon. Door gebruik te maken van 254 nm fotonen worden in principe geen O'- en OH'-radicalen gevormd en dus ook geen ozon.

Tabel 6.1 Benodigde golflengte voor het breken van een chemische binding [1]

Binding	Maximale golflengte om binding te breken	Indien geabsorbeerd wordt deze binding dan door dit licht gebroken?	
	[nm]	[253,7 nm]	[184,9 nm]
Koolstof			
C - C	346,1	ja	ja
C = C	196,1	nee	ja
C $\equiv$ C	143,2	nee	nee
C - Cl	353,0	ja	ja
C - F	246,5	nee	ja
C - H	289,7	ja	ja
C - N	392,7	ja	ja
C = N	194,5	nee	ja
C $\equiv$ N	134,5	nee	nee
C - O	334,4	ja	ja
C = O (aldehyden)	162,4	nee	nee
C = O (ketonen)	159,7	nee	nee
C - S	439,9	ja	ja
C = S	172,2	nee	nee
Waterstof			
H - H	274,4	ja	ja
Stikstof			
N - N	549,8	ja	ja
N = N	476,5	ja	ja
N $\equiv$ N	126,6	nee	nee
N - H (NH)	336,4	ja	ja
N - H (NH ₃)	280,3	ja	ja
N - O	595,6	ja	ja
N = O	176,5	nee	nee
Zuurstof			
O - O (O ₂)	240,1	nee	ja
-O - O-	608,3	ja	ja
O - H (water)	243,3	nee	ja
Zwavel			
S - H	344,5	ja	ja
S - N	248,6	nee	ja
S - O	240,3	nee	ja

Beneden de 220 nm wordt, bij verdere afname van de golflengte, de UV-straling in toenemende mate door de zuurstof in de lucht geabsorbeerd en wordt ozon gevormd. Daarom wordt de UV-straling beneden 200 nm ook wel 'vacuüm UV' genoemd.

Het bovenstaande leidt tot het volgende dilemma: Om bij directe UV-bestraling van afgassen zoveel mogelijk molecuulbindingen van ongewenste verontreinigingen te verbreken zijn korte golflengten nodig; beneden de 220 nm wordt de UV-straling echter in toenemende mate door in de afgassen aanwezige zuurstof geabsorbeerd. Bovendien wordt, zoals uit 6.4 zal blijken, de ozon dan niet op efficiënte wijze gevormd.

Voor desinfectiedoeleinden, tenslotte, is UV-straling in het gebied tussen 210 en 315 nm van belang; de maximale effectiviteit ligt bij 260 nm.

6.2.2 Benodigde intensiteit

Om molecuulbindingen met alleen UV-straling te verbreken is een minimale dosis (= intensiteit $\times$ bestralingstijd) nodig van ca. 0,5 J/cm² [2]. De indringdiepte van 185 nm fotonen bedraagt in droge lucht slechts 10 à 20 cm (tengevolge van de absorptie door zuurstof, waarbij ozon wordt gevormd). In vochtige lucht is dat nog minder, omdat dan bovendien OH'-radicalen worden gevormd.

6.2.3 Waterstofdonor

Om geen recombinatie van de gevormde radicalen te verkrijgen is, naast de UV-straling, een waterstofdonor nodig. Dit speelt bijvoorbeeld bij dehalogenering van gechloreerde koolwaterstoffen. Vele organische verbindingen zijn in principe geschikt om als waterstofdonor dienst te doen [1].

6.3 Productie van ozon

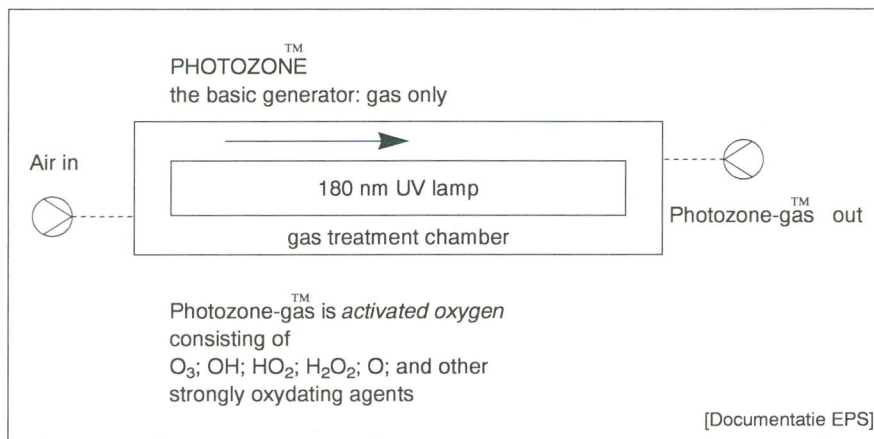
Ozon kan op verschillende manieren worden geproduceerd; de meeste processen zijn erop gericht de vaste binding van het zuurstofmolecuul te verbreken en 2 zuurstofatomen te verkrijgen. Deze bezitten echter een korte levensduur; zij reageren onmiddellijk met zuurstofmoleculen en vormen aldus ozon. Voor industriële toepassingen zijn de volgende produktiemethoden van belang [16]:

— UV-bestraling van droge lucht of zuurstof

Hierbij wordt door de golflengte van 185 nm van een 40 W lage-druk UV-lamp ongeveer 0,5 g ozon/h geproduceerd, met een maximale concentratie van 0,25 gew.%. Op deze wijze is ongeveer 44 kWh nodig om 1 kg ozon te produceren uit droge lucht.

Een gepatenteerd UV/ozon proces voor behandeling van afgassen, dat op dit principe berust, is het Photozone Advanced Photo Oxidation (Photozone-APO) proces. **Photozone gas** wordt gegenereerd door onder druk (6 bar) vochtige lucht en/of zuurstof met UV-licht van een golflengte kleiner dan 200 nm te bestralen (figuur 6.2) [5]. Bij de toegepaste energie van dit systeem (8 - 10 eV) wordt alleen zuurstof geactiveerd en is de vorming van NO_x minimaal. In het Photozone gas is ca. 35% van de oorspronkelijke zuurstof omgezet in actieve componenten (naast O₃ vooral OH'-radicalen en verder HO₂,

H₂O₂ en atomaire zuurstof); het gas bevat minder dan 1 g NO_x/m³. De oxydatiepotentiaal van dit Photozone gas is beter dan die van ozon. In totaal bevat het Photozone gas ca. 7 vol.% actieve componenten. Per m³ geproduceerd Photozone gas is ca. 0,2 kWh elektrische energie nodig (0,1 kWh voor het comprimeren en 0,1 kWh voor de UV-lampen).



Figuur 6.2 Productie van Photozone gas

— *via corona-ontlading*

Een corona-ontlading is een stille (vonkvrije) elektrische ontlading (zie 3.1). Deze wordt in het algemeen opgewekt om elektronen te versnellen. De kinetische energie van de elektronen wordt daarbij zo hoog, dat ze bij een botsing met een zuurstofmolecuul het molecuul splitsen in 2 atomen. De atomen reageren met andere zuurstofmoleculen en vormen ozon. Op deze wijze is ca. 16,5 kWh nodig om 1 kg ozon te produceren met een concentratie van 1 gew.%.

De thermische stabiliteit van ozon is beperkt; bij een temperatuur van ca. 300 °C en een verblijftijd van 2 seconden wordt ozon weer omgezet in zuurstof.

6.4 Chemische oxydatie met ozon alléén

Ozon is een sterk oxydatiemiddel, dat alleen overtroffen wordt door atomaire zuurstof (O'-radicaal), het hydroxyl radicaal (OH') en het element fluor. Andere oxydatiemiddelen als waterstofperoxyde, permanganaat en chloor bezitten een lagere oxydatie-potentiaal.

Directe reactie van het ozonmolecuul met organische verontreinigingen verloopt niettemin relatief langzaam en selectief. Verbindingen met dubbele (C = C) of driedubbele (C ≡ C) koolstofbindingen worden daarbij veel sneller (10⁴ - 10⁶ maal) aangegrepen dan gehalogeneerde of verzadigde koolwaterstoffen [1].

Er is relatief veel bekend over chemische oxydatie met ozon in **waterige oplossingen** [3]. In dat geval is niet ozon de actieve reactant, maar het door reageren van ozon met het OH⁻-ion ontstane OH'-radicaal, dat veel reactiever is. Verho-

ging van de pH kan deze afbraakroute bevorderen; het is echter een zeer complex mechanisme, waarbij bovendien waterstofperoxyde kan worden gevormd, dat op zijn beurt ook weer OH'-radicalen kan vormen. Het aangrijpen van het te oxyderen molecuul door het OH'-radicaal verloopt niet alleen sneller en heftiger, maar ook veel minder selectief dan bij directe reactie met ozon. De levensduur van ozon in de waterige oplossing is afhankelijk van de mate waarin de opgeloste stoffen radicalen kunnen vormen en neutraliseren. De vorming van radicalen wordt bijvoorbeeld tegengewerkt door (bi)carbonaat-ionen en alifatische alcoholen. Daardoor kan het nodig zijn, vele malen meer ozon toe te voegen, dan uit stoichiometrische berekening volgt.

De halfwaardetijd van ozon bedraagt bij pH = 8 ongeveer 10 minuten. Wat betreft de tussenprodukten, die kunnen ontstaan kan gesteld worden, dat de twee hiervoor beschreven reactieroutes (de directe oxydatie met ozon en de indirecte via de OH'-radicalen) leiden tot verschillende 'dochter' en 'dochter van dochter' produkten en dus tot verschillende eindconcentraties daarvan. Een (in principe mogelijke) volledige oxydatie van de koolstofatomen tot CO₂ wordt tegengewerkt doordat de bijna-eindprodukten de oplossing verzuren, hetgeen een lagere reactiesnelheid oplevert (een factor 10 lager per pH-punt verlaging) en dat de (bi)carbonaten (= CO₂ + H₂CO₃ + HCO₃⁻ + CO₃²⁻) de vorming van OH'-radicalen tegenwerken.

In sommige gevallen is een oxydatie met ozon in de waterfase beter dan in de gasfase; geurende componenten als ethylmercaptanen reageren in de gasfase met ozon tot acetaldehyde en di-ethylsulfide – beide eveneens geurende componenten – terwijl ze in de waterfase met ozon reageren tot ethylsulfonzuur, dat geurloos en niet-toxisch is [9].

Om een idee te krijgen over de reactiesnelheden in lucht kan gebruik worden gemaakt van de resultaten van oxydatieproeven met ozon in waterige oplossingen met een lage pH of waaraan inhibitoren zijn toegevoegd [3]. Samengevat komen deze neer op het volgende:

Bij een concentratie van 5 g ozon/m³ vloeistof is de snelheid van de directe ozonreacties met opgeloste organische verbindingen van de tweede orde (eerste orde in de ozonconcentratie en eerste orde in de concentratie organische verbinding). Bij een constante ozonconcentratie is de afname van de concentratie van een opgeloste organische verbinding van de eerste orde: de halfwaardetijd van de opgeloste organische verbinding is dan ongeveer constant (Bij een 10 maal lagere ozonconcentratie is de halfwaardetijd ongeveer 10 maal zo lang). Enkele gemeten halfwaardetijden voor diverse verbindingen onder deze condities zijn [3]:

- methylamines (0,01 s);
- aminoazijnzuur (0,1 s);
- PAK's (1 s);
- dichloorethyleen;
- fenol en chloorfenol (10 s);
- xyleen (100 s);
- trichloorethyleen, toluen, (chloor)benzeen en ammoniak (1000 s);
- alifatische alcoholen en ureum (10⁴ s);
- azijnzuur (10⁶ s).

De reactiesnelheidsconstanten van deze verbindingen lopen uiteen van respectievelijk 10⁶ l/mol.s (methylamine) tot 10⁻² l/mol.s (azijnzuur).

Op basis van deze gegevens kan worden verondersteld, dat de genoemde halfwaardetijden voor de betreffende verbindingen ook ongeveer gelden in lucht,

wanneer de ozonconcentratie daarin ongeveer 5 g ozon/m³ bedraagt. Aangezien het bij de beoogde gasreiniging gaat om concentraties te oxyderen verbindingen van minder dan enkele tientallen mg/m³ lucht, dient voor praktische toepassingen (redelijke benuttingsgraad van ozon) te worden uitgegaan van een ozonconcentratie van ca. 50 mg/m³. Bovendien dient de ozonemissie via afgassen te worden beperkt, omdat de maximum grenswaarde voor de buitenlucht 0,24 mg ozon/m³ bedraagt. Onder deze omstandigheden is de halfwaardetijd ongeveer een factor 100 langer dan bovengenoemd. Geurende verbindingen, zoals bijvoorbeeld methylamines en aminoazijnzuur, kunnen dan in redelijk korte tijd (een tiental seconden) worden geoxydeerd. De andere genoemde verbindingen zijn op deze wijze in de gasfase niet voldoende snel te oxyderen.

Voor geurstoffen kunnen de resultaten van oxydatie met ozon in de gasfase als volgt worden samengevat [10]: organische zwavel- en stikstofverbindingen en onverzadigde koolwaterstoffen worden relatief snel geoxydeerd, terwijl alifatische en aromatische koolwaterstoffen, alcoholen, carbonzuren, ketonen en aldehyden slechts langzaam oxyderen [10].

Door toepassing van ozon in combinatie met gaswassers kunnen de reactiesnelheden in vele gevallen aanzienlijk worden vergroot (een factor 100 tot 1000 [9]). Voor een dergelijke oxydatie komen echter ook andere oxydatiemiddelen, zoals waterstofperoxyde, in aanmerking. Een onderzoek naar oxydatiereacties van ozon met rookgassen van elektriciteitscentrales is in dit verband vermeldenswaard [4]. Als ozon wordt toegevoegd aan de rookgassen vóór de gaswassing worden bij temperaturen van 50 à 100 °C de volgende resultaten gemeld:

- door toevoegen van ozon aan rookgas, dat ca. 0,5 g NO/m³ bevat, in een verhouding van 1:1, wordt NO in de gasfase vóór de gaswasser al zeer effectief in ca. 0,1 s geoxydeerd tot NO₂. Andere oxydaties van NO, tot NO₃ en N₂O₅, vinden praktisch niet plaats.
- bij typische contacttijden in rookgaswassystemen wordt ozon, ongeacht de concentraties, niet benut voor oxydatie van SO₂ naar SO₃ (deze oxydatiereactie verloopt een factor 10⁸ trager dan die van NO naar NO₂).

6.5 UV-bestraling van ozon bevattende afgassen (UV/ozon)

UV-bestraling van afgassen die reeds ozon bevatten (UV/ozon) heeft een veel sterker effect op de chemische oxydatie dan op grond van de partiële bijdragen zou worden verwacht. Dit komt doordat de UV-fotonen de af te breken moleculen kunnen activeren terwijl daarnaast, bij een geschikte golflengte (<245 nm), ook radicalen en vrije atomaire zuurstof kunnen worden gevormd uit ozon/zuurstofmengsels. Hierdoor neemt het oxydatievermogen in de gasfase toe [1]. De verblijftijd in de reactor bedraagt enkele seconden bij behandeling in de gasfase. De behandelde afgasstroom dient in het algemeen te worden nabehandeld om het restant ozon te vernietigen.

Volgens [10] kunnen met behulp van deze UV/ozon-behandeling van afgassen de oxydatiesnelheden van geurende stoffen met een factor 50 vergroot worden.

Door **Pazallo** is experimenteel onderzoek uitgevoerd naar vernietiging van gechloreerde organische verbindingen door middel van katalytische oxydatie bij kamertemperatuur, waarbij tevens UV-straling en ozon worden toegepast [6]. Daarbij wordt echter niet vermeld welke UV-straling en welk katalysatormateri-

Tabel 7.1 Elektrische technieken voor gasreiniging; evaluatie van de belangrijkste aspecten

aspecten → technieken ↓			Geschiktheid van de techniek voor het afvangen van:										Elektrische parameters (van de voeding)			Financiën per 10 ³ m ³ /uur			min. en max. debiet (m ³ /u)	tijd tot implementatie (jr)	Opmerkingen, toepassingsgebieden, verwachte ontwikkelingen
			dioxinen	PCB's	PAK's	KW	NO _x	SO ₂	NH ₃	deeltjes	geur	overige stoffen	Vermogen per 10 ³ m ³ /u (kW)	Spanning (kV)	Stijgsnelheid (kV/μs)	a investeringen (Kfl)	b bedrijfskosten (Kfl/jr)	totale kosten* (kfl/jr)			
Elektrogranulaire filtering	Vaste korrelbedfilters	corona, DC of gepulst	+ 1)	--	--	--	--	--	++	--	--	0,1	25	DC of 2	12	3	4,2	5 x 10 ³ tot 10 ⁶	5		
		polarisatie DC	+ 1)	--	--	--	--	--	++	--	--	0,1	< 25	DC							
	Bewegende korrelbedfilters	corona, DC of gepulst	+ 1)	--	--	--	--	--	++	--	--	0,1	25	DC of 2	7 tot 170	0,6 tot 30	1,5 tot 50	5 x 10 ³ tot 10 ⁶	direct	boven 2 x 10 ⁶ m ³ /uur nog niet gerealiseerd	
		polarisatie DC	+ 1)	--	--	--	--	--	++	--	--	0,1	< 25	DC							
	Gesinterd keramisch filter	corona, DC of gepulst	+ 1)	--	--	--	--	--	++	--	--	0,1	25	DC of 2	< 12	<3	< 4,2	5 x 10 ³ tot 10 ⁶	5		
		polarisatie DC	+ 1)	--	--	--	--	--	++	--	--	0,1	< 25	DC							
(Gepulste) elektrische ontladingen	Corona ontladingen		0	+	+	+	++	++	0	++	+	Hg HCl	5 tot 15	70	200	50 tot 100	?		onbeperkt	3	pilot-plant rookgas: ~ 50 kW; andere gassen: lab.schaal
	Stille ontladingen		0	0	0	+ (VOC's)	++	++	0	--	0			< 25	50 Hz of 2			< 50.000	direct	O ₃ -productie, industrieel	
	Glim-ontladingen		0	0	0	+	+	+	0	--	-	Xyleen H ₂ S CH ₃ SH		1 à 2		10		< 50.000	2	pilot-plant O-xyleen, tot enkele MW	
Elektronenbestraling			0	0	0	+ (VOC's)	+	+	0	+	alleen groot-schalig	9			50 tot 100			> 20.000	direct	diverse pilot-plants tct 50.000 m ³ /uur	
Diëlektrische (rook)gasreiniging	plasma		+?	+?	+?	+?	+	+	+?	0	--									10?	lab. fase
	indirect		--	--	--	--	--	+	--	--	--	600	1 à 5	DC	1500	1500	1650	5 x 10 ³	10?	lab. fase	
	regenereren		--	--	--	--	--	--	--	--	--	roet								5?	prototype in ontwikk.
UV-straling	UV-straling (direct)		0	0	++	++	+	++	+ ²⁾	--	++	< 200	2 - 30	50 Hz	> 100	< 300	~ 300	> 10 ³	direct	waarschijnlijk alleen geschikt voor speciale toepassingen en lage concentraties (< 0,5 g/Nm ³)	
	Ozon-productie m.b.v. UV-straling (indirect)		-	0	+	+	++	-	--	--	+	> 0,2	0,2	50 Hz	25	> 0,3	~ 0,3	> 10 ³	direct		
Beste beschikbare niet elektrische techniek			preventie door Cl-vermindering; procesgeïntegreerde maatregelen				procesgeïntegreerde maatregelen; wassen; SCR	wassen; droge reiniging	kalk	doek-filters; centrif.	actieve kool; biofilter										

* bij afschrijving in 10 jaar (0,1a + b)

1) dioxinevorming door geschikte parameterkeuze ten dele te voorkomen

2) wordt omgezet in NO_x

aal is gebruikt. Als modelstof werd een mengsel van di- en trichloorethyleen in concentraties van ca. 5 ppm in lucht gekozen.

Zonder toevoeging van extra ozon bleek het hoogste rendement (64%) verkregen te worden bij een verblijftijd van 18 seconden in de reactor. De verblijftijd is de belangrijkste variabele die het rendement beïnvloedt.

Met toevoeging van extra ozon is bij een verblijftijd van enkele seconden reeds een vernietigingsrendement bereikt van meer dan 99%. Hierbij dient te worden opgemerkt dat er een drietal onbekende reactieproducten is ontstaan (totaal ca. 2 ppm) en dat het al dan niet inschakelen van UV-straling het resultaat niet bleek te beïnvloeden.

De invloed van de UV-straling lijkt, op grond van deze resultaten, dus beperkt. Daarbij moet echter worden opgemerkt, dat tetrachloorethyleen wellicht een betere modelstof was geweest, omdat die minder gemakkelijk door ozon wordt geoxydeerd.

6.6 Perspectieven voor UV/ozon-installaties

6.6.1 Procesafgassen met organische verontreinigingen (onder andere geur)

In de praktijk is Photozone gas bijvoorbeeld toegepast om de geuremissie van een brouwerij te beperken (figuur 6.3) [5]. Hiertoe is per 1000 m³ afgas ongeveer 1 m³ Photozone gas bijgemengd (indirecte route), waarna het afgas via een 30 m hoge schoorsteen is geëmitteerd. Door de toegepaste verdunning is er ongeveer 100 mg aan actieve componenten per m³ afgas toegevoerd. In dit geval van geuremissiereductie zijn de bedrijfskosten ca. f 0,04 per 1000 m³ behandeld afgas (f 0,04 per m³ Photozone gas). In dit geval is het te behandelen afgas dus niet direct bestraald, maar is bestraalde lucht (Photozone gas) gemengd met het afgas.

Directe bestraling van het reactiemengsel met hetzelfde UV-licht dat ook het Photozone gas opwekt zal de reacties sterk versnellen en is in veel gevallen juist van essentieel belang; eventueel kan extra ozon toegevoegd worden [1].

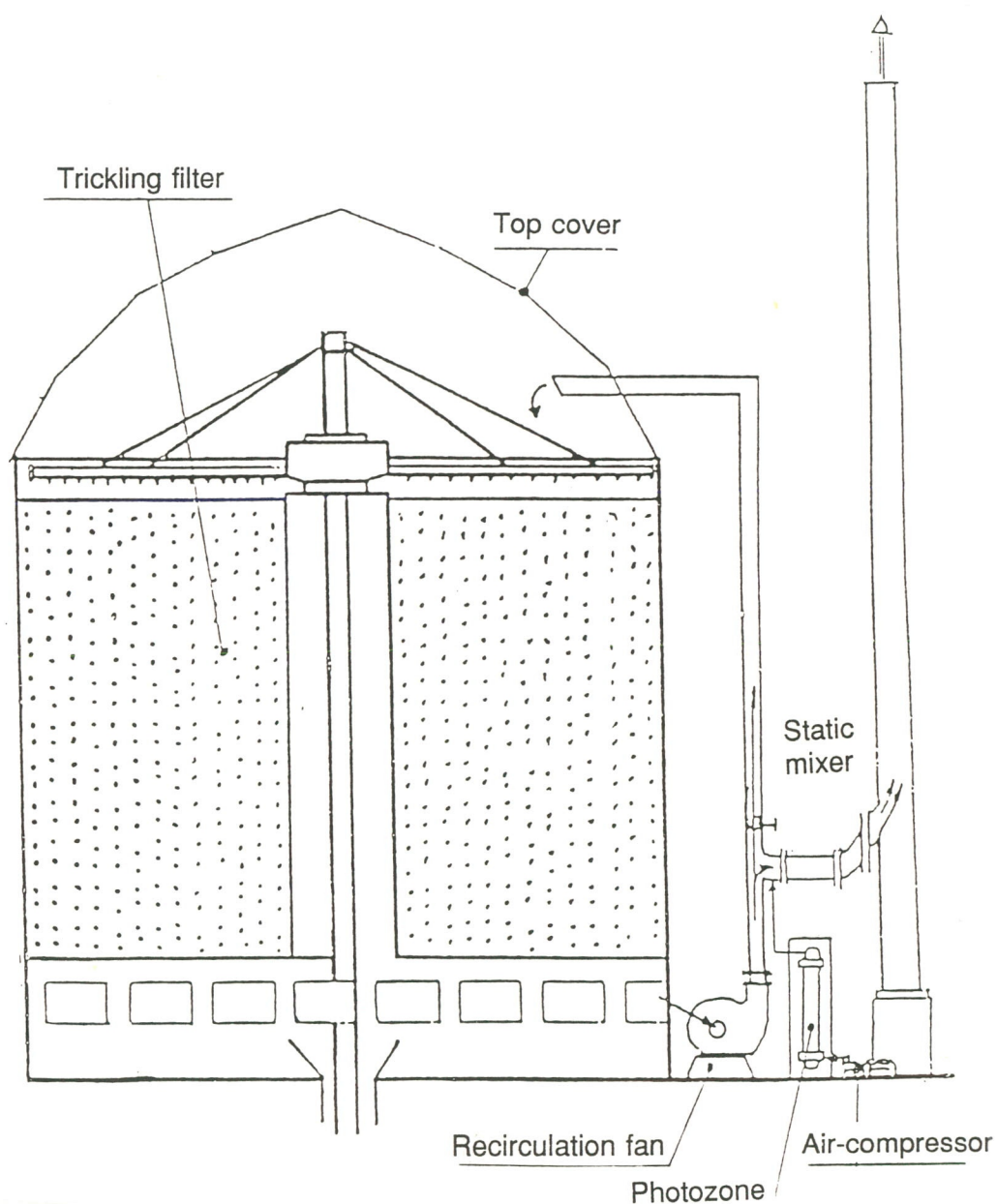
Om de oxydatiesnelheid van vele eerder genoemde verbindingen te vergroten is het nodig, dat ook het afgas wordt bestraald met UV-licht om directe fotolyse te bereiken (directe route). Hiervoor bestaan twee mogelijkheden:

- van alle afgas Photozone gas maken;
- het afgas bestralen met UV-licht met een golflengte > 250 nm en naar behoefte Photozone gas toevoegen.

Als van alle afgas Photozone gas wordt gemaakt, wordt optimaal gebruik gemaakt van zowel directe als indirecte fotolyse. Een voordeel hiervan kan zijn, dat onder andere in [3] genoemde verbindingen als xyleen, trichloorethyleen, toluen, (chloor)benzeen, ammoniak, alifatische alcoholen, ureum en organische zuren voldoende snel geoxydeerd kunnen worden in een praktisch realiseerbare installatie (relatief korte verblijftijd van enkele seconden in de reactor). De bedrijfskosten van een dergelijke behandelingsinstallatie kunnen in het uiterste geval oplopen tot f 40/1000 m³ behandeld afgas. Dit is erg hoog vergeleken met gangbare reinigingstechnieken voor de verwijdering van organische verbindingen uit

afgasstromen, zoals thermische naverbranding en adsorptie aan actieve kool. Dit is dus in deze vorm geen veelbelovende optie.

Mogelijk kunnen de kosten echter worden verlaagd door het toepassen van een katalysatormateriaal, dat door de UV-straling wordt geactiveerd. De onlangs op een congres in Canada gepresenteerde resultaten over fotokatalytische oxydatie met TiO_2 waren op dit punt veelbelovend.



Figuur 6.3 Geurverwijdering met Photozone gas van vloeibaar effluent uit een brouwerij

Een opzet, waarbij gekozen wordt voor het bestralen van de verontreinigde afgasstroom met UV-licht met een golflengte >250 nm heeft als voordeel, dat de indringdiepte van deze lange golf UV-straling veel groter is, omdat geen energie wordt geabsorbeerd door zuurstof- en waterdampmoleculen (er ontstaat dus geen Photozone gas). Alle energie kan worden benut voor het openbreken van de molecuulbindingen van ongewenste verontreinigingen. Door deze 'aangeslagen' afgasstroom tegelijkertijd naar behoefte te mengen met Photozone gas kunnen energiegebruik en ongewenste restemissies worden geoptimaliseerd. Hierbij dient wel te worden bedacht dat, anders dan bij korte golf UV-straling, molecuulbindingen zoals $C = C$, $C - F$, $C = N$, $S - N$ en $S - O$ nu niet verbroken kunnen worden. Voor de dubbele bindingen $C = C$ en $C = N$ is dat geen probleem, omdat deze op zich reeds reactiever zijn dan enkele bindingen.

Eventueel kan deze techniek ook worden toegepast als voorbehandeling van afgassen met slecht oplosbare verontreinigingen, die biologisch goed kunnen worden afgebroken (bijvoorbeeld aromaten). Door het openbreken en gedeeltelijk oxyderen van de keten zijn de gevormde tussenprodukten mogelijk beter oplosbaar en kan, bijvoorbeeld in een biofilter, een veel hogere afbraakcapaciteit worden gerealiseerd. De combinatie van UV-straling en biofiltratie kan zowel wat betreft ruimtebeslag als bedrijfskosten interessant zijn. Bij de directe route kunnen ook ongewenste tussenprodukten ontstaan (die bij analyse van de uittredende gasstroom niet worden gevonden als er niet naar wordt gezocht), hetgeen onder andere ook bij de verwijdering van PCB's uit transformatorolie is vastgesteld. Het kan nuttig zijn, een dergelijke opzet nader te onderzoeken aan de hand van een aantal modelstoffen.

6.6.2 Rookgassen met stikstof- en zwaveloxyden

Over de mogelijkheden van UV-straling in combinatie met ozon is weinig openbare literatuur beschikbaar. Een Amerikaans patent zegt hierover [7]: Bij bestraling van een gasmengsel van SO_2 , NO , H_2O en O_2 met $UV < 220$ nm wordt via de vorming van atomaire zuurstof SO_3 en NO_2 gevormd. De gevormde oxyden reageren met water tot zwavel- en salpeterzuur. Deze zuren hydrateren en vormen druppeltjes bij een overmaat aan waterdamp. Van SO_3 is bovendien bekend, dat het de werking van elektrostatische stofreinigers verbetert.

Volgens dit patent is voor een verwijderingsrendement voor SO_2 van 90% voor UV-behandeling van de rookgassen (bij 10% UV-opbrengst) ca. 15% van de door de centrale geleverde energie nodig. De totale kosten van SO_2 -verwijdering met behulp van nageschakelde droge rookgasreiniging met kalk bedragen voor de Nederlandse situatie ongeveer 1 cent/kWh geleverd vermogen [11]. Bij een gemiddelde kostprijs van ca. 7 cent/kWh geleverd elektrisch vermogen van een kolencentrale [12], zijn de kosten voor conventionele SO_2 -verwijdering dus ca. 15% van de totale kostprijs. Ervan uitgaande, dat de kostprijs van de UV-behandeling van rookgassen vooral door de energiekosten voor de UV-lampen wordt bepaald zou men hieruit voorzichtig kunnen concluderen, dat UV-behandeling van rookgassen perspectieven biedt – vooral wanneer de UV-opbrengst van de lampen verder kan worden verbeterd. Een nadeel van de directe route is dat uit de N_2 ook (ongewenste) stikstofoxyden gevormd zullen worden. De mate waarin dat gebeurt hangt mede af van de gebruikte golflengte.

6.7 Referenties

- [1] Het photozone-APO proces in relatie tot de verwerking van HKW houdende afvalstromen en de vorming van ongewenste nevenprodukten. Nesraad B.V. voor VROM, december 1989.
- [2] Documentatie Berzon B.V.
- [3] Hoigne, J.; Ozonation of water: Selectivity and rate of oxidation of solutes. Ozone, Science and Engineering. Vol. 1, 73-85, 1979.
- [4] Lozovskii, V.A.; The role of ozone in oxidising reactions when it interacts with the flue gases from thermal power stations. Thermal Engineering, 35 (8), 1988.
- [5] Odour control in effluent treatment. Water services, 92, no. 1113, 478-479, 1988.
- [6] Palazzolo, M.A.; Destruction of chlorinated hydrocarbons by catalytic oxidation. EPA-report 600/2-86-079, september 1986.
- [7] Kim, Y.W.; US-patent no. 4995955 (1991). Optically-assisted decontamination proces.
- [8] Horner, G.V.; Sewage treatment and odour control. Water Services, 92, no.1113, 1988.
- [9] Meuli, K.; Why use ozon for cleaning up contaminated air? Phoenix International 5/1986.
- [10] Barker, R.; Improving the efficiency of ozone in odour treatment by activation with U.V. Light. The Electricity Council Research Centre, Capenhurst, England. Report ECRC/M1233, 1979.
- [11] Schmal, D.; Droge rookgasreiniging door middel van chemische omzettingen. Monografieën Informatiesysteem Technieken; Compartiment Lucht. RIVM/IMET-TNO, rapportnr.736101007, juli 1990.
- [12] Duurzame Energie – een toekomstverkenning. Krekel van der Woerd Wouterse B.V., Rotterdam, 1987.
- [13] Eliasson, B. and U. Kogelschatz; UV Excimer radiation from dielectric-barrier discharges. Applied Physics B 46, 299-303 (1988).
- [14] Documentatie Philips International B.V., Correspondence Course Lighting Application: UV Radiators and Applications, no. 12, 1987.
- [15] Angehrn, M.; Ultraviolet Disinfection of Water. Aqua, no. 2, 1984.
- [16] Documentatie Epicon Environmental Systems B.V. Ozon, E.E.S. 001, september 1991.

7 Evaluatie

E. Mot, IMET-TNO

In de voorgaande hoofdstukken is een aantal elektrische technieken voor gasreiniging in enig detail besproken. Daarbij is onderscheid gemaakt in vijf hoofdsystemen, namelijk:

- elektrogranulaire filtering;
- elektrische ontladingen;
- elektronenbestraling;
- diëlektrische technieken;
- UV-straling.

Elk van deze technieken (behalve elektronenbestraling) is verder uitgesplitst in een aantal sub-technieken, zodat in totaal sprake is van 10 à 20 technieken. De literatuur wijst echter wel uit dat ook dit een te simpele voorstelling van zaken is. De meeste van de betreffende technieken bevinden zich namelijk in een vroeg ontwikkelingsstadium – en dit houdt in dat zo ongeveer elke onderzoeker zijn eigen varianten beschrijft. En in dat kader spreekt het vanzelf dat alleen geslaagde experimenten in de publiciteit worden gebracht.

In deze situatie, waarin het onderzoekgebied nog volop in ontwikkeling is, is het evalueren van deze klasse van technieken op hun toekomstige toepasbaarheid een hachelijke zaak. Want nieuwe vindingen, dan wel verbeteringen aan bestaande systemen, kunnen het beeld dat hier wordt geschetst op korte termijn ingrijpend wijzigen. Met name de ‘NATO advanced workshop on Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control’, Cambridge, England, september 1992 toonde aan dat er nog veel nieuws op komst is. In het bijzonder in hoofdstuk 3 zijn hieruit enkele ontwikkelingen vermeld; de recente datum van deze workshop liet een volledige inwerking van de gegevens daaruit in deze studie echter niet toe.

De evaluatie van de hier beschreven elektrische technieken voor gasreiniging dient plaats te vinden op een tweetal niveaus.

Ten eerste zal binnen het raamwerk van deze studie moeten worden gezien of van de beschreven elektrische technieken voor gasreiniging sommige boven andere te prefereren zijn (7.1). En ten tweede zal de kans op implementatie van de hier beschreven elektrische technieken moeten worden geëvalueerd door ze te vergelijken met de beste beschikbare niet-elektrische techniek (7.2). Dit laatste kan uiteraard slechts op globale wijze plaatsvinden, omdat het gebied van niet-elektrische (dus mechanische, fysische, chemische) gasreiniging breed is en in deze studie niet centraal staat. Niettemin zullen in dezen enkele kanttekeningen worden gemaakt, omdat de implementatie van elektrische technieken in hoge mate door de beschikbaarheid en de kosten van niet-elektrische wordt bepaald.

Zowel bij de vergelijking van elektrische technieken ten opzichte van elkaar als bij de vergelijking van elektrische technieken met niet-elektrische vormt de grote onzekerheid aangaande de toekomstige ontwikkeling van diverse elektrische technieken, en hun kosten, een belangrijke beperking. Anderzijds kunnen de resultaten van deze studie mede een impuls geven om aan bepaalde aspecten bij toekomstig onderzoek meer – of juist minder – aandacht te besteden.

Daarom wordt, op basis van de eerder in deze studie verzamelde gegevens, in 7.3 een overzicht gegeven van de behoefte aan onderzoek, gericht op het verder tot ontwikkeling brengen van de meestbelovende elektrische technieken van gasreiniging.

Als aanzet voor een evaluatie zijn in tabel 7.1 de belangrijkste aspecten van de in hoofdstuk 2 t/m 6 besproken gasreinigingstechnieken samengevat.

7.1 Vergelijking elektrische technieken onderling

Een evaluatie van het onderwerp *elektrogranulaire filtering* (hoofdstuk 2) wijst uit, dat vooral het gesinterd keramisch filter als een goede kanshebber moet worden beschouwd voor het langs elektrische weg verwijderen van deeltjes uit een gasstroom. Het is zowel in klein- als grootschalige installaties toepasbaar en er is minder randapparatuur bij nodig dan bij andere typen van elektrogranulaire filtering (EGF). Deze techniek zou in principe zelfs kunnen worden toegepast om stof af te vangen in een full-size kolencentrale, als alternatief voor de thans toegepaste elektrostatische precipitatie (ESP). De kosten van EGF op deze schaal zouden in dezelfde orde als die van ESP kunnen liggen; het ruimtebeslag van EGF is echter vermoedelijk minder dan de helft van dat van ESP.

Het feit dat bij EGF gepulste corona-ontladingen kunnen worden gebruikt om het stof op te laden leidt tot de vraag of deze ontladingen dan niet tevens kunnen worden gebruikt om NO_x , SO_2 en andere stoffen uit een (rook)gasstroom te verwijderen. Inderdaad blijken hiertoe mogelijkheden te bestaan. In een artikel [1] (1986) over 'Combined removal of SO_2 , NO_x and fly ash from flue gas using pulsed streamer corona' vermelden J.S. Clements et al. een geslaagd experiment in dezen, waarbij (in een laboratoriumopstelling) initiële concentratie van 1000 ppm SO_2 voor meer dan 90% werd verwijderd. Tegelijkertijd werden met behulp van de DC-biasspanning waarop de pulsen waren gesuperponeerd stofdeeltjes verwijderd. En wel tot een significant beter niveau dan met ESP wordt gerealiseerd. NO_x -verwijdering wordt volgens de auteurs eveneens mogelijk geacht, maar is in het kader van [1] niet onderzocht.

Op grond van tabel 7.1 zou het relevant kunnen zijn om na te gaan of met deze methode ook PCB's, PAK's en koolwaterstoffen kunnen worden afgevangen; het gecombineerd afvangen van verschillende stoffen in één installatie kan sterk kostenverlagend werken.

Uit de deelstudie over (gepulste) elektrische ontladingen (hoofdstuk 3) blijkt dat corona en stille ontladingen voor het verwijderen van vele gassen, waaronder SO_2 en NO_x , kunnen worden toegepast en corona-ontladingen bovendien voor het verwijderen van deeltjes. Bovendien is gepulste corona bruikbaar bij temperaturen boven ca. 400 °C; bij EGF is dat een globale grens, omdat daarboven de geleidbaarheid van het filtermateriaal sterk toeneemt. Dit is dus een structureel voordeel van deze technieken boven EGF.

Harde kostencijfers ontbreken voorsnog; ook hier bestaat echter de indruk dat deze techniek in principe kan concurreren met de somkosten van ESP en bestaande chemisch/fysische technieken. Dit sluit dus geheel aan op de visie die vanuit de technologie van elektrogranulaire filtering op basis van bias DC met een daarop gesuperponeerde gepulste corona wordt gegeven.

Elektronenbestraling (hoofdstuk 4) is vooral aantrekkelijk bij grote debieten, bijvoorbeeld > 20.000 m³/uur. Dit in verband met de minimaal mogelijke afmetingen van de benodigde elektronenversnellers. De methode is in principe geschikt voor het bestrijden van NO_x , SO_2 , VOC's en deeltjes. Studeestudies wijzen op dit moment uit, dat de coronatechniek wellicht goedkoper is; beide technieken zijn echter waarschijnlijk goedkoper dan de somkosten van conventionele partiële reinigingstechnieken.

Diëlektrische (rook)gasreiniging (hoofdstuk 5) komt in deze studie wat minder kansrijk naar voren dan de eerder besproken technieken. Bij de techniek met door microgolven opgewekt plasma is nog vrij veel onzeker; de indruk bestaat dat, zelfs bij positief resultaat van laboratoriumproeven, de kosten een bezwaar zullen vormen voor implementatie. Dit omdat, afgezien van de kostbare apparatuur en het hoge stroomverbruik, ook nog hulpmaterialen (bijvoorbeeld C_2H_2) nodig zijn. Andere elektrische technieken voor de verwijdering van (onder andere) NO_x en SO_2 zijn goedkoper.

Het kenmerk van diëlektrische technieken is echter dat ze vaak toepassing vinden in *marktniches*: zeer specifieke situaties, waarin ze DE oplossing voor het betreffende probleem blijken te vormen [2]. Een voorbeeld daarvan in dit verband betreft de ontwikkeling van schone dieselmotoren, waarbij roetafzetting in het uitlaatfilter periodiek wordt naverbrand door diëlektrische verhitting. Het laat zich aanzien dat op den duur zo'n installatie voor een vrachtwagen ca. f 600,- gaat kosten.

Bij *ultraviolette straling*, tenslotte (hoofdstuk 6), kan men onderscheid maken tussen de directe en de indirecte methode. Bij de directe wordt de gehele (rook)gasstroom behandeld, wat zeer veel energie kost. Bij de indirecte wordt ozon gemaakt, die in een bepaalde verdunning aan het rookgas wordt toegevoegd. De kosten van de directe methode zijn een factor 1000 hoger dan die van de indirecte. In de praktijk zal men, naar gelang de verontreinigingsgraad van het gas en de gewenste mate van zuivering, werken met een mix van beide methoden. Die mix zal experimenteel, dan wel op basis van ervaring, moeten worden vastgesteld. Een voordeel van UV is, dat de omvang van de apparatuur flexibel is en elke gewenste mix daardoor goed kan worden gerealiseerd. UV is ook goed werkzaam bij zeer lage concentraties van verontreinigingen en leent zich daardoor goed voor sommige typen van geurbestrijding. Daarnaast kan UV worden ingezet voor het bestrijden van andere ongewenste verbindingen in gasstromen – vooral PAK's, KW's en SO_2 . Bij grote debieten zullen andere methoden echter vaak goedkoper uitvallen - tenzij door fotokatalytische oxydatie de effectiviteit kan worden verbeterd.

Op basis van het voorgaande kunnen nu de 'beste kanshebbers' worden geselecteerd. Het is duidelijk, dat dit alleen maar een globaal beeld geeft van wat werkelijk speelt en nog kan gaan spelen. Maar bij de evaluatie van een nog zo jonge klasse van technieken is een dergelijk overzicht toch relevant (tabel 7.2).

Tabel 7.2 Kansrijke elektrische technieken van gasreiniging

Techniek	Af te vangen componenten	Opmerkingen
Elektrogranulaire filtering (EGF) met gesinterd keramisch filter	deeltjes	- klein- en grootschalig bruikbaar - relatief weinig randapparatuur nodig - omvang < 50% van ESP¹⁾ - kosten vergelijkbaar met ESP
EGF met gesinterd keramisch filter, gecombineerd met gepulste corona-ontladingen	deeltjes NO _x , SO ₂ (PCB, PAK, KW)	- vermoedelijk goedkoper dan de som van partiële conventionele bestrijdingsmethoden
Elektrische ontladingen (gepulste corona)	NO _x , SO ₂ , Hg-damp, deeltjes	- <i>grootschalig</i> goedkoper dan som partiële bestrijdingsmethoden
	VOC's, H ₂ S, geur, xyleen etc.; deeltjes	- <i>kleinschalig</i> (industrieel) waarschijnlijk eerder op de markt dan grootschalige rookgasreiniging
Elektronenbestraling	NO _x , SO ₂ , VOC's	- alleen grootschalig, > 20.000 m³/uur
Diëlektrische verwarming		- in specifieke situaties toepasbaar (bijvoorbeeld naverbranden van roet in uitlaatfilters van dieselmotoren!) - vaak te kostbaar
UV-straling	geur	- mix van direct en indirect (via O₃-productie) - voor andere dan geurcomponenten vaak te kostbaar²⁾

PCB: Polychloor biphenylen; PAK: Polyaromatische koolwaterstoffen; KW: Koolwaterstoffen; VOS: Vluchtige Organische Stoffen; HKW: Halogeen Koolwaterstoffen

¹⁾ Elektrostatische Precipitatie (van deeltjes); conventionele methode voor stofafvangen bij elektriciteitscentrales

²⁾ Tenzij de combinatie met katalysatormaterialen effectief is

De 'kansen' van de hier genoemde technieken krijgen echter pas werkelijke betekenis wanneer ze worden afgewogen tegen bestaande niet-elektrische technieken. Een uitgebreide behandeling daarvan past niet in het kader van deze studie; in de volgende paragraaf zal aan dit onderwerp enige aandacht worden geschonken.

7.2 Vergelijking elektrische technieken met niet-elektrische

Het gebruik van elektrische technieken voor het reinigen van gassen is geen doel op zichzelf. De kans die een elektrische techniek in dit verband bezit om tot technische implementatie te komen staat of valt met de technologische en economische bruikbaarheid van niet-elektrische technieken waarmee (min of meer) hetzelfde kan worden bereikt. Een beschrijving van deze technieken is gegeven in de monografie over technieken op het gebied van bestrijding van luchtverontreiniging, die reeds in hoofdstuk 1 werd vermeld [3]. Deze monografie fungeert daarom mede als uitgangspunt voor de beschouwingen in deze paragraaf. In het volgende worden de diverse technieken kort besproken en waar mogelijk met elkaar vergeleken, aan de hand van de af te vangen verontreinigingen.

7.2.1 Deeltjes

Er bestaan twee principiële niet-elektrische methoden om deeltjes af te vangen: het gebruik van cyclonen en het gebruik van doekfilters.

Bij een *cycloon* wordt het verontreinigde gas in een ronddraaiende beweging gebracht. Doordat deeltjes (vast en vloeibaar) een grotere soortelijke massa bezitten dan het gas worden zij naar buiten geslingerd en van de gasstroom gescheiden.

Cyclonen zijn goedkoop; ze bevatten geen bewegende delen. In [3] worden kosten genoemd van f 0,13 à f 0,19 per 1000 m³ lucht. Het vangstrendement is zelden hoger dan 95%. Het karakter van het proces brengt met zich mee, dat grote deeltjes beter worden afgevangen dan kleine (< 2 µm). Het systeem is tot 1000 °C bruikbaar. Een cycloon verbruikt 0,25 tot 1,5 kWh/1000 m³ aan energie.

In *doekfilters* wordt een met stofdeeltjes beladen gas door een geweven of viltachtig doek geleid. De stofdeeltjes worden op en in het doek gevangen. De filterwerking is in eerste instantie gebaseerd op de neiging van de deeltjes om zich te hechten aan andere 'voorwerpen': vezels van het filter en deeltjes die zich daarop reeds hebben afgezet.

Het doek kan uit natuurlijke of kunststofvezels worden vervaardigd. Temperaturen boven 200 °C zijn meestal niet toegestaan. De kosten variëren van f 0,50 per 1000 m³ gas bij grote installaties (> 10⁵ m³/uur) tot f 3,- per 1000 m³ gas bij zeer kleine (< 1000 m³/uur).

Het vangstrendement is hoog: 95 à 99,9% (voor stofdeeltjes tussen 0,1 en 1 µm 95%; daaronder en daarboven hoger).

Een doekfilter verbruikt 0,5 tot 2 kWh/1000 m³ aan energie.

Vergelijking van deze opties met EGF (met gesinterd keramisch filter) (tabel 7.2) levert globaal het volgende beeld op:

- EGF is wat reinigingsgraad betreft vergelijkbaar met doekfilter.
- De kosten van EGF (f 0,50 per 1000 m³, 2.2.3) zijn vergelijkbaar met die van grootschalige doekfiltering.
- EGF is bruikbaar tot 400 °C; in combinatie met pulscorona in principe tot ca. 800 °C. Doekfilters zijn tot ca. 200 °C bruikbaar.
- Cyclonen zijn goedkoper, maar presteren ook minder.

Het voorgaande impliceert dat EGF in diverse situaties als een reële optie kan worden beschouwd.

7.2.2 Geur

Niet-elektrische methoden om geur uit een gasstroom te verwijderen zijn het gebruik van een actief koolfilter en biofiltratie.

Bij *actieve koolfiltering* wordt een verontreiniging vanuit de gasfase door middel van adsorptie aan de actieve kool gebonden. Wanneer een zekere verzadigingsgraad is bereikt wordt de actieve kool vervangen of geregenereerd. De verontreinigde kool wordt bij hoge temperatuur (ca. 1200 °C) in een draaitrommeloven verbrand.

Toepassing vindt vooral plaats bij vluchtige organische stoffen – waaronder geurstoffen. De kosten liggen bij verwijdering van 10 mg geurcomponenten per m³ afgas op f 1,- à f 2,- per 1000 m³ behandeld afgas. De temperatuur moet minstens 30 à 50° onder het kookpunt van de te verwijderen verbinding liggen om voldoende adsorptiecapaciteit te waarborgen. In de praktijk ligt deze meestal tussen 0 en 40 °C.

Biofiltratie is de aerobe omzetting van in lucht (respectievelijk gassen) voorkomende verontreinigingen in niet-verontreinigende componenten (voornamelijk CO₂, H₂O en anorganische zouten). Hiervoor wordt gebruik gemaakt van een biologisch actief filtermateriaal (compost, turf en dergelijke), eventueel gemengd met een grovere, min of meer inerte fractie (boomschors, heide, kunststof, lava en dergelijke). Micro-organismen in het filtermateriaal breken de verontreinigende stoffen af; toevoegen van extra voedingsstoffen en afvoer van afbraakprodukten kan soms nodig zijn.

Vergelijking van geurverwijdering door UV-straling met die door actieve kool (AK) of biofiltratie (BF) zal kostentechnisch vaak in het voordeel van de laatste twee uitvallen. Vooral bij lage concentraties zijn de niet-elektrische technieken in vele gevallen bruikbaar. In speciale situaties kan UV echter de aangewezen weg zijn. Zo is AK bij styreendamp niet goed bruikbaar, omdat deze in de kool gaat polymeriseren. En bij BF wordt styreen slecht afgebroken.

Dit is ongetwijfeld niet het enige voorbeeld waarbij UV de aangewezen weg is. Maar over dit onderwerp is nog maar weinig bekend – ook ten aanzien van de dimensionering van de benodigde apparatuur. Met name is denkbaar dat UV ook in het voordeel is bij de afbraak van andere vluchtige monomeren en bij moeilijk afbreekbare microverbindingen, zoals PAK's, dioxinen en PCB's.

7.2.3 Zwaveldioxyde

Het langs niet-elektrische weg verwijderen van SO₂ uit een (rook)gasstroom kan op twee verschillende manieren plaatsvinden, namelijk door *wassen* en door middel van *droge chemische omzettingen*. In beide gevallen berust de werking in principe op de neutralisatie:



a. Wassen

Bij de in de praktijk toegepaste wassystemen worden de in het rookgas aanwezige componenten geabsorbeerd in een waterige oplossing of suspensie. Bij SO₂ vindt neutralisatie plaats met behulp van kalksteen, Ca(OH)₂ of NaOH. De overall-reactie luidt in het eerste geval:



er ontstaat dus gips.

Op technologische schaal kan het proces wel of niet regenererbaar worden uitgevoerd. Bij niet-regenererbare processen worden de (basische) toeslagstoffen eenmalig gebruikt en het produkt wordt afgevoerd als afval of toegepast als

grondstof. Bij regenererbare processen worden de toeslagstoffen opnieuw gebruikt en er ontstaat opnieuw SO_2 , maar in meer geconcentreerde vorm. Deze kan voor de vervaardiging van zwavel of zwavelzuur worden gebruikt.

Verreweg de meeste processen zijn thans niet regeneratief; regenererbare zijn (vooralsnog) te duur.

De processen (bij rookgasreiniging) zijn vrijwel altijd volledig geautomatiseerd en bezitten een hoge mate van bedrijfszekerheid.

Het elektriciteitsverbruik is 3 à 5 kWh/1000 Nm^3 gas; het verwijderingsrendement bedraagt 85 à 90%.

De kosten bedragen f 3 à f 4 per 1000 Nm^3 rookgas.

b. Droge chemische omzettingen

Bij droge chemische omzetting worden verontreinigende gasvormige zure componenten uit een (rook)gasstroom, zoals SO_2 , HCl , HF en NO_x , geneutraliseerd met behulp van basische toeslagstoffen (adsorbentia). Daarbij worden vaste zouten gevormd, eventueel onder gelijktijdig plaatsvindende oxydatie. Bijvoorbeeld, met kalk (CaO) als toeslagstof:

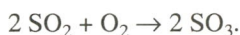


of



De in de praktijk toegepaste toeslagstoffen kunnen niet worden gegenereerd.

Een alternatief is de zure componenten katalytisch om te zetten in niet of minder schadelijke gasvormige stoffen. Voor wat betreft NO_x wordt in dit verband verwezen naar 7.2.4; (katalytische) oxydatie van SO_2 vindt plaats volgens



Deze reactie wordt gevolgd door een condensatieproces (productie van zwavelzuur).

Deze klasse van methoden kan geïntegreerd of nageschakeld worden toegepast. Bij geïntegreerd kan men denken aan een toeslag van kalksteen (CaCO_3) of dolomiet ($\text{CaCO}_3 \cdot \text{MgCO}_3$) in een wervelbedverbrander, of aan pneumatische insputting van basische toeslagstoffen op een geschikte plaats in de verbrandingsinstallatie.

Nageschakelde systemen komen in diverse uitvoeringsvormen voor. Zo kan de poedervormige basische toeslagstof pneumatisch worden ingespoten in een separate reactor, gevolgd door reactie tijdens meevoering van de deeltjes met het gas ('entrained flow reactor').

Bij sproeidroogsystemen wordt de toeslagstof in de vorm van een slurrie of oplossing verneveld in een buisvormige reactor. In een gepakt bed reactor wordt de gasstroom dwars door een langzaam naar beneden bewegende korrelstroom geleid, waarbij de korrels de basische toeslagstof vormen. Ook een nageschakelde wervelbedreactor behoort tot de mogelijkheden.

Het energieverbruik van dit soort systemen ligt in de orde van 2 à 3 kWh/1000 Nm³ rookgas; verwijderingsrendementen kunnen bij geïntegreerde technieken tot rond 80% gaan, bij nageschakelde tot boven 90%; veel hangt daarbij af van de systeemkeuze. Geïntegreerde systemen zijn goedkoper dan nageschakelde. Bij steenkoolverbranding worden voor geïntegreerde systemen bedragen genoemd van f 1,- à f 3,- per 1000 Nm³ rookgas voor SO₂-bestrijding. Bij nageschakelde systemen geldt (voor HCl-verwijdering bij afvalverbranding) f 5,- à f 10,- per 1000 Nm³ rookgas.

Vergelijking van deze technieken met elektrische is nauwelijks mogelijk, omdat de laatste (UV, corona en stille ontladingen) zich nog in een ontwikkelingsstadium bevinden. In dit verband is vooral de coronatechniek interessant, omdat daarbij gecombineerde verwijdering van deeltjes, SO₂, NO_x en organische verbindingen in principe mogelijk is.

7.2.4 Stikstofoxyden¹⁾

Ca. 90% van de NO_x in rookgassen is NO. NO is slecht oplosbaar in water en moet om, bijvoorbeeld met CaCO₃, te worden geneutraliseerd eerst tot NO₂ of (liever) tot NO₃ worden geoxydeerd. Bij emissies in de buitenlucht vindt die oxydatie vrij snel spontaan plaats; in een rookgasstroom zou oxydatie met ozon of katalytische oxydatie (bij 300 à 400 °C) het meest voor de hand liggen. Beide opties zijn kostbaar en vragen veel energie. Wassen van rookgassen ten behoeve van NO_x-verwijdering ligt daarom niet zo gunstig.

Beperking van NO_x-uitstoot wordt daarom bij voorkeur gezocht in een stelsel van preventieve maatregelen. Daartoe behoort onder andere het laag houden van de verbrandingstemperatuur (850 - 1000 °C), een mede daarop gericht aangepast branderontwerp, getrapte verbranding en het injecteren van NH₃ in de rookgassen in een specifiek temperatuurtraject. Dit laatste houdt in feite het midden tussen een end-of-pipe en een procesgeïntegreerde maatregel.

Daarnaast kan NO_x worden verwijderd door *selectieve katalytische reductie* (SCR). Daarbij worden de stikstofoxyden gereduceerd tot moleculaire stikstof en waterdamp met behulp van een reductiemiddel (ammoniak of ammonia), in aanwezigheid van een katalysator. Het voordeel van deze methode is, dat geen afvalstoffen ontstaan.

SCR is de meest bekende en tevens de meest efficiënte manier om stikstofoxyden uit de rookgassen te verwijderen. Reacties zijn:



De reacties met NH₃ verlopen zonder katalysator bij 850 - 950 °C; daarbij kan echter ook het broeikasgas N₂O ontstaan. SCR kan reeds bij 250 tot 400 °C en zelfs bij 180 °C plaatsvinden.

De verwijderingsgraad bedraagt 80 à 90%; het proces is in principe betrouwbaar, maar de procesbeheersing vereist aandacht, onder andere omdat ammoniakslip kan optreden. Dit kan tot vervuiling van de vliegas leiden (die vaak in de bouw-

¹⁾ slechts ten dele aan [3] ontleend

industrie wordt toegepast) en tot zoutafzettingen in de apparatuur. Verder kunnen katalysatoren vergiftigd worden door onder andere alkalimetalen en arseen. Het systeem bevindt zich in een beginnend stadium van industriële toepassing. De kosten worden geraamd op f 8.000 à f 13.000 per vernietigde ton NO_x, respectievelijk (bij de EPON-centrale te Nijmegen) op ca. 0,75 ct/kWh. De investering bedraagt f 300/kW.

Ook hier is *vergelijking* met elektrische technieken (corona en stille ontladingen) niet mogelijk, omdat van de laatste geen financiële gegevens beschikbaar zijn.

7.3 Behoeften aan verder onderzoek

De beschrijvingen van de diverse elektrische technieken van gasreiniging die in hoofdstuk 2 t/m 6 werd gegeven, de daaruit afgeleide veelbelovende opties (7.1) alsmede de vergelijking met voorhanden niet-elektrische technieken (7.2) leiden tot een indicatie van de behoeften aan onderzoek op dit brede vakgebied. Hierna worden deze behoeften globaal beschreven, in de volgorde van de eerder behandelde technieken.

7.3.1 Elektrogranulaire filtering

Uitontwikkelen van het keramische filterelement

Uit het voorgaande is het duidelijk dat EGF een veelbelovende nieuwe techniek is, waarvan industriële toepassing binnen afzienbare tijd mag worden verwacht. Voor het zover is zal echter duidelijkheid moeten worden verkregen over een aantal aspecten. Daarbij staat het basisprincipe niet meer ter discussie, maar wel de technologische uitvoeringsvorm. In concreto gaat het hierbij om:

- a. De definitieve materiaalkeuze voor het filter. Aluminiumoxyde ligt het meest voor de hand, maar welke zuiverheid noodzakelijk is moet nog worden onderzocht.
- b. Het evalueren van de voor- en nadelen van respectievelijk een vlakke dan wel een cilindrische uitvoeringsvorm van het filterelement. Het uitvoeren van proeven met beide uitvoeringsvormen onder diverse procescondities.
- c. Het vastleggen van het definitieve productieproces van het filter voor een aantal debieten. Dit onderzoek moet worden uitgevoerd in samenwerking met een keramiekproducent.
- d. Nagaan van welk (keramisch) materiaal de elektroden het beste kunnen worden vervaardigd en welk productieproces daarvoor in aanmerking komt.
- e. Het kiezen van het drukpulssysteem dat nodig is voor het periodiek regenereren van het filterelement.
- f. Het vervaardigen van een filtersysteem op pilotschaal, dat alle onderdelen omvat, zoals filterelement, corona-oplaadsysteem, regeneratiesysteem, vliegafvoer, etc.

De tijd benodigd voor de ontwikkeling tot commercialisering, dus tot en met het uitvoeren en analyseren van de experimenten op pilot-schaal, wordt geschat op ca. 3 à 5 jaar.

De kosten van dit ontwikkelingstraject worden geschat op 1 à 3 Mfl, afhankelijk van de omvang van het pilot-schaalonderzoek en de vorderingen op het gebied van de materiaal- en procesontwikkeling.

Onderzoek naar gepulste corona-ontladingen

Dit onderzoek dient gericht te zijn op een tweeledig doel, namelijk het opladen van de stofdeeltjes en het teweegbrengen van chemische reacties in de gasfase (met NO_x, SO₂, dioxinen, PAK en dergelijke).

Daarbij zal naar verwachting een positieve streamer corona worden toegepast. Onderzoek loopt in dezen parallel met het onder 7.3.2 vermelde.

7.3.2 (Gepulste) elektrische ont-ladingen

Uit experimenten in laboratoria, daaruit voortvloeiende pilot plants alsmede de economische evaluatie van full scale toepassingen is gebleken, dat (gepulste) elektrische ont-ladingen een aantrekkelijk alternatief kunnen vormen voor traditionele, meest nat-chemische, reinigingstechnieken. Daarbij ligt het aantrekkelijke vooral in het feit dat met deze klasse van elektrische technieken meerdere verontreinigingen simultaan kunnen worden bestreden. Toepassing is mogelijk op vele stoffen en ieder jaar wordt de lijst met mogelijke toepassingen langer. Anderzijds brengen deze opties het risico met zich mee, dat ongewenste nieuwe verbindingen worden gevormd. Deze situatie leidt tot de volgende behoeften aan verder onderzoek:

- a. Inventarisatie van de verontreinigingen die naar verwachting met deze klasse van technieken kunnen worden bestreden, gerelateerd aan de te kiezen (al dan niet gepulste) ont-ladingsvorm.
- b. Het uitvoeren van onderzoek om de realiseerbaarheid van die bestrijding experimenteel vast te stellen.
- c. Het ontwikkelen van modellen met het doel een beter begrip te verkrijgen van de processen die zich bij (gepulste) elektrische ont-ladingen afspelen. In dat verband kan men onder andere denken aan energie-overdracht van voeding naar ont-lading, produktie van radicalen, vervolgreacties in het gas, in aerosolen en op de reactorwand. Verder kunnen deze modellen leiden tot systeem-optimalisering; deze is in het bijzonder relevant bij opschaling van processen tot respectievelijk pilot en industriële schaal.
(Mede) op basis van voornoemde modelvorming kunnen mogelijkerwijze criteria worden opgesteld aangaande de wijze waarop de vorming van ongewenste nieuwe verbindingen kan worden vermeden, of althans beperkt.
- d. Er is onderzoek nodig om tot goede pulsvoedingen te komen. De thans gebruikte schakelende elementen, onder andere thyatronen en vonkbruggen, bezitten een te korte levensduur (enkele maanden tot een jaar) en er is geen uitzicht op een oplossing van dit probleem. Zij kunnen daarom niet als een realistische industriële optie worden beschouwd.
Schakelen met thyristors is wél mogelijk; de levensduur daarvan is voldoende – maar de vereiste stijgsnelheden van de hoogspanningspulsen zijn daarmee niet zonder meer realiseerbaar. Gebruik van thyristors dient daarom te worden gecombineerd met pulscompressie.

Verder wordt (buiten Nederland) onderzoeks- en ontwikkelingswerk verricht naar de zogenaamde 'pseudo-spark switch'. Deze is nog niet op de markt, maar zou als schakelement in principe een oplossing kunnen bieden.

Samenvattend, er is behoefte aan het in kaart brengen van de problematiek van pulsvoedingen die resulteert uit de pulsvormen, nodig voor bestrijding van verontreinigingen. Daarbij gaat het in feite om de ontwikkeling van nieuwe basisconcepten, omdat de huidige niet in voldoende mate aan de te stellen eisen kunnen voldoen. Concreet betekent dit dat er behoefte is aan ontwikkelingswerk gericht op H.S.-voedingen die korte (1 μ s) repeterende spanningen kunnen leveren met een frequentie van 100 à 200 Hz, bij gemiddelde vermogens tot 100 kW voor minder dan f 10,- per Watt en met een levensduur van vele jaren.

- e. Modelmatig en experimenteel onderzoek naar de mogelijkheden om het energiegebruik te optimaliseren. Zo is gebleken dat door aanwezigheid van aerosolen het energetisch rendement met factoren kan worden verbeterd. Een systematische analyse van de diverse aspecten die het energetisch rendement beïnvloeden is in dit verband noodzakelijk.
- f. Het opzetten van demonstratie-experimenten, om de mogelijkheden en beperkingen van deze klasse van technieken beter in kaart te kunnen brengen. Dit enerzijds ter onderbouwing van systeemstudies voor grootschalige toepassing en anderzijds om snelle marktintroductie bij kleinschaliger toepassingen te bevorderen.

7.3.3 Elektronenbestraling

Onderzoek naar elektronenbestraling vindt op dit moment in Nederland niet plaats. Dit zou echter wel kunnen worden opgezet – met name aan TU's waar men over elektronenversnellers beschikt. In dit verband zou men kunnen denken aan onderzoek naar de volgende aspecten:

- a. Verbetering van het energetisch rendement. De laatste jaren is het, door toepassing van intermitterende bestraling, gelukt het energetisch rendement sterk te verbeteren; zo is een effectiviteit van 2 eV per verwijderd molecuul eerst theoretisch voorspeld en vervolgens op laboratoriumschaal gerealiseerd. Die verbetering hangt samen met reacties in aanwezigheid van (of in) aerosolen. Het begrip aangaande deze processen is nog onvolledig; om tot verantwoorde industriële opschaling te komen is verdere modelvorming, respectievelijk verificatie van elders uitgevoerde modelberekeningen nodig.
- b. Gezien de grote gevolgen van de aanwezigheid van aerosolen in een gas voor het verwijderingsrendement van verontreinigingen is separaat onderzoek naar de rol van aerosolen in dit verband gewenst.
- c. Onderzoek als vermeld in 7.3.2, onderdeel a., b., c., e. en f. is ook voor het onderwerp elektronenbestraling gewenst. Studies en experimenten op de gebieden van respectievelijk elektrische ontladingen en elektronenbestraling kunnen in diverse gevallen in samenhang worden gezien.

7.3.4 Diëlektrische (rook)gasreiniging

Uit hoofdstuk 5 van deze studie is reeds gebleken dat rechtstreekse toepassing van diëlektrische technieken voor (rook)gasreiniging onmogelijk, of althans zeer ondoelmatig is. Wel kan men, in zeer specifieke situaties ‘marktniches’ [2], de diëlektrische techniek met succes gebruiken. Een voorbeeld daarvan is het in hoofdstuk 5 uitgewerkte verbranden van roet in uitlaten van dieselmotoren. Andere voorbeelden zijn op dit moment niet voorhanden; het karakter van de diëlektrische techniek brengt echter met zich mee dat die zich in de toekomst wel degelijk kunnen voordoen.

Vooralsnog wordt hier alleen de onderzoekbehoefte samengevat die resulteert uit voornoemde specifieke toepassing.

Het tot nu toe uitgevoerde onderzoek naar het reinigen van filters (verbranden van roet) van uitlaatgassen van dieselmotoren heeft redelijke resultaten opgeleverd [4].

Onderzoek is noodzakelijk om dit systeem verder in praktijk te realiseren. Een dergelijk onderzoekproject kan in de volgende fasen worden ingedeeld.

- Vaststellen van de omvang van het probleem, wetgeving op dit gebied en eisen die nu en in de toekomst aan roetemissie worden gesteld in Nederland, respectievelijk in de EG.
- Vaststellen van de huidige technieken voor afvangen van roet uit de uitlaat van dieselmotoren.
- Bepalen van de markt van een uitlaatreinigingssysteem voor roet.
- Bouw, of aanschaf, van een prototype van een microgolfsysteem voor reinigen van uitlaatfilters van roet.
- Uitvoeren van experimenten met dit prototype onder verschillende condities.
- Ontwerp van een installatie op basis van microgolven voor het discontinu reinigen van uitlaatpijpfilters van roet.
- Ontwerp van een meetsysteem en testen van het systeem in de praktijk.
- Eventueel verbeteren van het ontwerp en het ontwerpen van een installatie voor gebruik in de praktijk.

Tussen de verschillende fasen liggen beslispunten waarbij over de voortgang van het project kan worden beslist. Het project moet worden uitgevoerd met deskundigen op gebied van emissies van motoren en microgolfsystemen en in later stadium in samenwerking met een fabrikant van dieselmotoren.

7.3.5 UV-straling

Bij het reinigen van gassen met behulp van UV-straling wordt vooral gedacht aan gassen met relatief lage concentraties aan verontreinigingen (tot ca. 0,5 g/Nm³). Bij hogere concentraties wordt deze techniek te kostbaar en zou men, wanneer het organische verontreinigingen betreft, eerder aan naverbranden kunnen denken. De consequentie hiervan is dat men bij het toepassen van UV-straling in de eerste plaats zou kunnen denken aan geurbestrijding; daarnaast kan het bestrijden van anorganische verontreinigingen in rookgassen echter ook een rol spelen.

- a. Het fundamentele onderzoek in het laboratorium dient zich te richten op een hoog verwijderingsresultaat van een UV-ozon-behandeling volgens de directe route, waarbij de gehele te reinigen luchtstroom door de UV-reactor wordt geleid. Belangrijke aspecten zijn in dit verband: ingangscondities van de te behandelen procesgasstromen (temperaturen, concentraties, diverse mengsels, vochtgehalte etc.), bepaling van de randvoorwaarden voor volledige afbraak, bepaling van reactieproducten, de veiligheidsaspecten en het energieverbruik. Belangrijke organische verontreinigingen, waarbij het effect dient te worden vastgesteld, zijn: aldehyde, hexaan, keton, toluen, styreen, dichloormethaan, chloorbenzeen, PAK's en dioxines. Enkele interessante anorganische verontreinigingen zijn SO₂ en NO in rookgassen.
- b. Het toegepaste onderzoek moet zich richten op een combinatie van de directe en de indirecte route om de behandelingskosten te beperken en toch nog een acceptabel effect te bereiken. Hierbij kan de UV-ozon-behandeling van afgas- sen worden toegepast als voorbehandeling om slecht oplosbare verontreinigingen gedeeltelijk te oxideren, waardoor ze beter oplosbaar zijn in water. In een nageschakeld biofilter kan dan mogelijk een hogere afbraakcapaciteit worden gerealiseerd (bijvoorbeeld styreen).

7.4 De weg naar implementatie

Uit voorgaande hoofdstukken is gebleken dat diverse nieuwe elektrische technieken van gasreiniging uitzicht bieden op concrete toepassing. Het belangrijkste pluspunt is daarbij dat ze waarschijnlijk goedkoper zijn dan de thans gangbare, (meestal) niet-elektrische.

Het zou echter niet juist zijn om te veronderstellen dat nieuwe technieken zonder meer zullen worden toegepast omdat ze goedkoper zijn. Voordat sprake is van feitelijke grootschalige implementatie van deze technieken zal een aantal niet-technische belemmeringen uit de weg moeten worden geruimd.

Daarbij is het mede van belang dat de hier besproken technieken hun toepassing kunnen vinden in een breed scala van industrietakken. Zonder enige compleetheid te willen claimen kan men, bij wijze van voorbeeld, denken aan toepassingen bij:

- elektriciteitsproductie;
- afvalverbranding;
- papierindustrie;
- destructiebedrijven;
- bepaalde chemische industrieën;
- voedings- en genotsmiddelenindustrie;
- geur- en smaakstoffenindustrie;
- veevoederindustrie;
- aardappelmeelindustrie;
- overslag van poeders
-

Dat betekent dus in feite dat deze klasse van technieken op den duur 'technologisch gemeengoed' zou moeten gaan worden.

Als belemmeringen bij de introductie kunnen in dit verband een rol spelen (onder andere [5]):

- a. beperkte innovatiebereidheid en know-how van industrieën;
- b. ontbreken van kennis en ervaring bij de betreffende bedrijfstakken;
- c. onzekerheid over economische risico's;
- d. tijdschaal van reeds gedane investeringen;
- e. gebrek aan ervaring met de apparatuur op de gewenste schaalgrootte.

Op elk van deze aspecten zal hierna kort worden ingegaan. Waar mogelijk worden oplossingsrichtingen aangegeven – maar in feite is het probleem structureel van karakter: een nieuwe technologie moet rijpen, heeft zijn tijd nodig om op grote schaal te worden geïmplementeerd.

- ad a. In het onderhavige project is in feite de keten van onderzoeker tot en met gebruiker vertegenwoordigd. Dat bevordert een goede acceptatie van nieuwe ontwikkelingen, omdat de bruikbaarheid van allerlei nieuwe concepten nu vanuit verschillende invalshoeken wordt gezien.

Wat ontbrak was de stem van de kleine toekomstige gebruiker; dat kon in dit stadium ook moeilijk anders.

- ad b. De vele eerder genoemde bedrijfstakken waarin deze klasse van apparaten hun toepassing kunnen gaan vinden zullen adequaat moeten worden voor- gelicht over mogelijkheden, kosten en beperkingen van de apparatuur. In eerste instantie zou het in dit verband voor de hand kunnen liggen om voor dit doel een workshop te organiseren, waarbij het onderhavige rapport als één van de discussiestukken kan worden ingebracht.

In tweede instantie zouden cursussen en congressen op dit gebied een rol moeten gaan spelen.

Daarnaast kunnen publikaties in technische tijdschriften, onder andere over de resultaten van deze studie, maar ook over deelonderwerpen, de markt rijp helpen maken voor toepassing.

- ad c. Uit deze studie is gebleken dat van de financieel-economische kant van de nieuwe technologieën nog onvoldoende bekend is. Dit hangt uiteraard nauw samen met de stand van de ontwikkeling, per techniek. Bereidheid tot implementatie kan echter pas worden verwacht wanneer veel groter duidelijkheid is verkregen – niet alleen aangaande de investeringskosten, maar ook met betrekking tot aspecten als bedrijfskosten (inclusief energieverbruik), onderhoud, storingsgevoeligheid, veiligheid en levensduur.

- ad d. De tijd die nodig is om reeds verrichte investeringen af te schrijven is een gegeven, waardoor de introductie van nieuwe technologie terdege kan worden vertraagd. Uiteraard zal vervanging eerder kunnen plaatsvinden naarmate die nieuwe technologie goedkoper is.

- ad e. Diverse systemen bevinden zich thans, in diverse stadia van ontwikkeling, op weg van laboratorium naar respectievelijk pilot en industriële schaal. Apparatenbouwers spelen in dat verband mede een belangrijke rol en kunnen, op basis van marktonderzoek, de vervaardiging van produktierijpe concepten waar voldoende vraag naar is ter hand nemen.

Het saldo van bovengenoemde overwegingen kan worden gekenschetst als: 'er is reden tot gematigd optimisme'. Deze klasse van technieken zal het pas 'gaan maken' als in het bijzonder de financieel-economische resultaten beter uitvallen dan die van de conventionele. Dat vraagt nog wat tijd – maar wanneer de marktintroductie goed wordt gestuurd, mede op basis van de hier gegeven overwegingen, zal implementatie zeker plaatsvinden.

7.5 Referenties

- [1] Clements, J.S., Minuzo, A., Finney, W.C. and R.H. Davis; Combined Removal of SO₂, NO_x, and Fly Ash from flue gas using pulsed streamer corona.
Dept. of Physics, Florida State University, Tallahassee, Florida 32306
CH 2272 - 3/86/000 - 1183 \$1,00, © 1986 IEEE.
- [2] Boot, H., Hinsenveld, M. Jansen, W.J.L., Meijer, G.J., Mot, E. en H. Munter; Diëlektrische verhitte in de milieutechnologie.
Rapport no. 90-250, TNO-MT, juli 1990.
- [3] Bartelds, H. et al.; Monografieën Informatiesysteem Technieken; Compartiment Lucht. A.C.F. Wiering, J. Joziasse (ed.); RIVM/IMET-TNO, rapportnummer 736101007, herziene uitgave, augustus 1992.
- [4] G. Coghlan, A.; Microwave cook the soot out of diesel exhaust; New Scientist, 14 March 1992, p. 23.
- [5] Cramer, J. en J. Schot; Problemen rond innovatie en diffusie van milieutechnologie; STB-TNO, november 1989.

8 Conclusies en aanbevelingen

8.1 Conclusies

1. Elektrische technieken voor gasreiniging bevinden zich, met uitzondering van ESP¹⁾, in een ontwikkelingsstadium, dat kan variëren van laboratorium- tot en met demonstratiefase.
2. In de nabije toekomst zullen goed gekozen toepassingen van elektrische technieken voor gasreiniging tot kostenbesparingen kunnen leiden in vergelijking met niet-elektrische.
3. Om tot grootschalige implementatie van elektrische technieken te komen zal een goede, stapsgewijze marktintroductie veel aandacht vereisen. Betere gegevens over kostenaspecten zijn in dit verband essentieel.
4. Stof afvangen met behulp van EGF²⁾ is qua kosten waarschijnlijk vergelijkbaar met ESP; het ruimtebeslag van EGF is echter vermoedelijk minder dan de helft.
5. Geïntegreerde bestrijding van deeltjes, NO_x, SO₂ en andere stoffen uit een (rook)gasstroom is mogelijk door EGF te combineren met gepulste coronatechniek. Dit biedt uitzicht op kostenverlaging in vergelijking tot de somkosten van de partiële conventionele bestrijdingsmethoden.
6. Gepulste elektrische ontladingen kunnen (ook zonder EGF) worden gebruikt om deeltjes en verontreinigende gassen simultaan te bestrijden. Ook hierbij mag worden verwacht dat de kosten lager zullen gaan uitvallen dan de somkosten der partiële conventionele bestrijdingsmethoden.
7. Met elektronenbestraling kunnen eveneens deeltjes verontreinigende gassen en aerosolen tegelijk worden bestreden. Systeemstudies wijzen op dit moment uit, dat de coronatechniek wellicht goedkoper is. Niettemin is ook elektronenbestraling naar verwachting goedkoper dan de som der partiële conventionele bestrijdingsmethoden.
8. Diëlektrische technieken bieden weinig perspectief voor gasreiniging. Indirect kunnen ze wel worden benut, zoals voor het naverbranden van roet in de uitlaten van dieselmotoren. Het is vrij zeker, dat zich in de toekomst meer van dit soort *marktniches* zullen voordoen.
9. Ultraviolette straling is vooral aantrekkelijk bij lage concentraties (< 0,5 g/Nm³) en in speciale situaties, waarin andere reinigingsmethoden problemen opleveren (bijvoorbeeld styreen). Door toepassing van fotokatalytische oxydatie kan UV-straling mogelijk ook bij hogere concentraties aantrekkelijk worden.

1) Elektrostatische Precipitatie (van stof)

2) Elektrogranulaire Filtering

8.2 Aanbevelingen

1. Het is zinvol de EGF-techniek door te ontwikkelen vanuit de huidige gevorderde laboratoriumfase tot en met de pilotfase. Daarbij dient aandacht te worden besteed aan materiaalaspecten, produktietechnologie, ontwerp, schaalgrootte, regeneratietechniek, etc.
2. De combinatie van EGF met gepulste elektrische ontladingen als middel tot geïntegreerde bestrijding van deeltjes, gassen en aerosolen dient te worden onderzocht.
3. Verder onderzoek naar (gepulste) elektrische ontladingen is nodig om tot optimale bestrijdingsconcepten te komen. Daarbij gaat het om modelvorming, om experimenteel onderzoek en om pilotplants, om bedrijfservaring op te doen en kostenschattingen te kunnen maken. Parallel daarmee dienen adequate pulsvoedingen te worden ontwikkeld.
4. Modelvorming en experimenteel onderzoek op het gebied van gasreiniging met behulp van elektronenbestraling vindt thans in Nederland niet plaats. Entamering van dit onderwerp door een TU, die over een elektronenversneller beschikt zou te overwegen zijn.
5. Marktrijp maken van diëlektrische naverbranding van roet in de uitlaatfilters van dieselmotoren wordt aanbevolen.
6. Het is van belang, fundamenteel en toegepast onderzoek uit te voeren naar de potentiële betekenis van UV/ozonbehandeling van verontreinigingen in (rook)gassen, alsmede naar de mogelijkheden om de effecten daarvan te versterken door toepassing van fotokatalysatoren.
7. Ten behoeve van kennisoverdracht aan een breder technisch publiek zou, om tot marktintroductie te komen, (onder andere) een workshop over elektrische technieken van gasreiniging nuttig kunnen zijn.
De resultaten van deze studie kunnen daarbij mede als uitgangspunt dienen.

9 Verantwoording

Naam en adres van de opdrachtgevers

Holec Projects B.V.

Postbus 258

7550 AG Hengelo

Hoogovens Technical Services B.V.

Postbus 10.000

1970 CA IJmuiden

NOVEM B.V.

Postbus 8242

3503 RE Utrecht

Philips Lighting B.V.

Postbus 80020

5600 JM Eindhoven

EnergieNed

Postbus 9042

6800 GD Arnhem

Namen en functies van de medewerkers

Dr. P.H. de Haan,

werkgroepleider Functionele Polymeren en Toepassingen,

Kunststoffen en Rubber Instituut TNO, Delft

Ir. H.J.G. Kok, wetenschappelijk medewerker,

afd. Afgas- en Verbrandingstechnologie,

Instituut voor Milieu- en Energietechnologie TNO, Apeldoorn

Namen van instellingen waaraan een deel van het onderzoek is uitbesteed

KEMA, Arnhem

Datum waarop, of tijdsbestek waarin, het onderzoek heeft plaatsgehad

september 1991 t/m december 1992

Ondertekening



Dr. ir. E. Mot
onderzoekleider,
stafingenieur

afd. Afgas- en

Verbrandingstechnologie (AVT)

Goedgekeurd door



Ir. H.M.G. Temmink

werkgroepleider,

Thermische Conversie en

Gasreiniging, afd. AVT

Bijlage

Monografieën Informatiesysteem Technieken
Compartment Lucht

Pag. nr.: -iv-

Inhoudsopgave

pagina:

Verzendlijst.....	iii
Inhoudsopgave.....	iv
Summary.....	v
Samenvatting.....	1
1. Inleiding.....	2
2. Gascyclonen.....	4
3. Aktieve-kooladsorptie bij luchtverontreiniging.....	19
4. Rookgaswassing.....	44
5. Gaswassing.....	63
6. Thermische naverbranding.....	89
7. Katalytische naverbranding.....	119
8. Doekfiltratie.....	138
9. Biofiltratie.....	160
10. Biowassing.....	177
11. Droge rookgasreiniging door middel van chemische omzettingen.....	190
12. Elektrofiltratie.....	208
13. Selectieve katalytische reductie (ten behoeve van NOx bestrijding bij verbrandingsprocessen).....	226
Bijlage: " Milieutechnologische kennis toegankelijk via computer ".....	246

