Onderzoek NO_x verwijdering

Corona toepassing voor NO_x verwijdering uit tunnellucht

projectnr. 200765
revisie 02
14 Oktober 2009

Opdrachtgever

Ministerie van Verkeer en Waterstaat
Rijkswaterstaat DVS
Innovatieprogramma Luchtkwaliteit
van der Burghweg 1
2600 GA Delft

datum vrijgave	beschrijving revisie 02	goedkeuring	vrijgave
14 oktober 2009	Definitief rapport	R. Smulders	M.Pronk

Inhoud

		Blz.
1	**Inleiding**	**5**
2	**Doelstelling en achtergrond**	**6**
2.1	Doelstelling	6
2.2	Achtergrond	6
3	**Opzet van het onderzoek**	**9**
3.1	Detailopzet in het onderzoek	9
3.2	Samenstelling van tunnellucht	10
4	**Uitgangspunten bij het onderzoek**	**12**
5	**Beschouwingen**	**13**
5.1	Theoretische benadering van het verwijderingsproces	13
5.2	Kruisgevoeligheid in de metingen	14
5.3	Vocht en waterdamp in een natte corona-omgeving	15
6	**Literatuuronderzoek**	**18**
7	**Uitvoering van het onderzoek op NOx verwijdering**	**21**
7.1	Verwijdering uit "droge" lucht = referentie verwijderingsniveau;	21
7.2	Verwijdering uit water(damp)verzadigde (natte) lucht via voorschakeling van waterdampdiffusoren en waterverneveling;	24
7.3	Toepassing van een waterfilm op de aardplaten van de reactor	25
7.4	Toepassing van simultane NaOH injectie in natte lucht;	25
7.5	Toepassing van NH_3 injectie in (natte) lucht;	26
7.6	Gecombineerde NH_3 en waterfilm toepassing in droge lucht;	27
7.7	Naschakeling van een demister systeem voor afvang van de waterfase uit de lucht	28
7.8	Analyse van de verwijderde waterfase op HNO_3 aanwezigheid	29
7.9	Samenvatting van de resultaten	29
7.10	Bespreking van de resultaten	29
7.11	Specifiek energiegebruik en energiekosten	29
7.12	Haalbare verbetering in energiekosten	29
8	**Onderzoek naar fijn stof verwijdering**	**29**
8.1	Uitgevoerd stofonderzoek, gravitatieve stofmetingen	29
8.2	Nader onderzoek naar de stofkarakteristiek van de stoffilters	29
8.2.1	*Opnamen met elektronenmicroscoop*	*29*
8.2.2	*Hypothese*	*29*
8.3	Stofkarakterisering door RPS analyse	29
9	**Vertaalslag naar de praktijk**	**29**
9.1	Situatie bij de tunnelmond	29
9.2	Energetische aspecten in de praktijk	29
9.3	Investeringen	29
9.4	Exploitatiekosten	29
9.5	Reactorgrootte	29
9.6	Ruimtebeslag	29
10	**Conclusies**	**29**

Bijlagen:

Bijlage 1	Stofonderzoek Buro Blauw
Bijlage 2	Kwantitatieve oppervlaktescans stoffilters RPS Analyse

Samenvatting

De emissie van NO_x levert rondom tunnelmonden concentraties op in de buitenlucht die de norm overschrijden. Om deze overschrijdingen te beheersen heeft Rijkswaterstaat DVS in het kader van het Innovatieprogramma Luchtkwaliteit Oranjewoud opdracht gegeven onderzoek te verrichten gericht op NO_x verwijdering uit tunnellucht met behulp van Corona plasma techniek. Bij de Faculteit Electrical Engineering van de Technische Universiteit Eindhoven is de groep "Electrical Power Systems" actief op het gebied van "Corona-Plasma technologie". Oranjewoud heeft in samenwerking met deze groep het onderzoek aan een pilotreactor uitgevoerd, gericht op verwijdering van NO_x. Tegelijk is gekeken naar simultane verwijdering van fijn stof.

NO_x verwijdering is technisch goed mogelijk met Corona techniek. Uit het onderzoek blijkt dat de energie-efficiency die wordt gehaald, 1,4 ppm NO_x/(J/l), nog beperkt is en overeenkomt met een energiegebruik van ca. 106 kWh/kg NO_x die wordt verwijderd. Het beste resultaat wordt verkregen door de reactie in een natte reactor te laten verlopen en kleine hoeveelheden ammoniak aan de ingaande lucht te voegen.

Op zichzelf kan deze succesvolle NO_x verwijdering bij omgevingtemperatuur met Corona technologie als een technische doorbraak worden beschouwd. Naast drukke verkeerstunnels zou deze techniek ook voor parkeergarages in binnensteden een oplossing kunnen zijn.

De simultane verwijdering van fijn stof lijkt mogelijk maar om dit zeker te weten is nader onderzoek nodig, met name omdat er ook mogelijk zouten worden gevormd in de reactor, die bij metingen als stof zichtbaar worden. De wijze van afvangen van deze zouten is nog onderwerp van nadere studie.

Voor een praktijkinstallatie voor een tunnel waardoor zich 5000 voertuigen/uur bewegen, is een indicatieve investering geraamd van € 600.000,--/tunnelbuis. De energiekosten zouden bij nagenoeg volledige verwijdering van NO_x ca. € 60,--/uur bedragen in de spitsuren. Bij 80% verwijdering bedragen deze energiekosten ca. € 50,--/uur.

Summary

The level of NO_x emissions in and around tunnel entrances exceeds the legally accepted limits. As part of Oranjewoud's work with Rijkswaterstaat (RWS - Ministry of Transport, DVS) on their Dutch Air Quality Innovation Programme for, a study has been instigated into the management of these emissions. This study looks at the effects of removing NO_x from tunnel air by the use of Corona Plasma technology.

The Faculty of Electrical Engineering, at the Technical University of Eindhoven, has set up the "Electrical Power Systems" group to study "Corona Plasma Technology". Working with this group, Oranjewoud has run a pilot reactor in order to study of the effectiveness of this technology at removing NO_x. Simultaneously, a second study has been conducted into the removal of fine particulates.

NO_x removal is technically possible with Corona technology. The studies show that the energy-efficiency is about 1.4 ppm NO_x $(J/l)^{-1}$ which is equivalent to the removal of approximately 106 kWh kg^{-1} NO_x . The best results are obtained in a wet reactor and with the introduction of a small amount of ammonia to the inflowing air stream.

The successful removal of NO_x at normal air temperatures using Corona technology can be seen as a technological breakthrough. This is a technology that is easily implemented in busy traffic tunnels or inner-city, multi-storey car-parks.

The simultaneous removal of fine particulates seems possible but, in order to be certain, further research is required. This is due to the possible formation of salts in the reactor, that are visible in measurements of fine particulates. A method of capturing these salts is the subject of further study.

To put such an installation into use in a tunnel with a traffic-flow of 5000 vehicles per hour would involve an approximate investment of € 600,000.- per tube. The energy costs by a

near complete removal of NO_x would be approximately € 60.- per hour at peak traffic times. The energy costs by 80% removal of NO_x would be approximately € 50.- per hour.

1 Inleiding

In het IPL programma van Rijkswaterstaat is nog een witte vlek aanwezig met betrekking tot de behandelings-/verwijderingsmogelijkheden van NO_x in de emissielucht van tunnels en tunnelmonden. Via het IPL is op 2 maart 2009 aan Oranjewoud gevraagd of zij mogelijkheden ziet in de afbraak van NO_x met behulp van Corona technologie en of in dat geval een voorzet tot een projectvoorstel op korte termijn kan worden ingediend. Oranjewoud heeft bevestigd dat er in principe mogelijkheden zijn om met behulp van deze technologie NO_x uit luchtstromen te verwijderen.

2 Doelstelling en achtergrond

2.1 Doelstelling

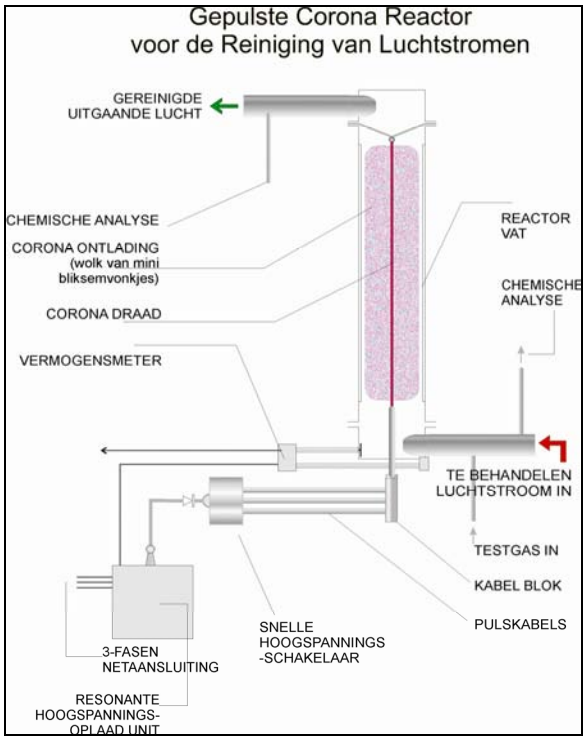
Doelstelling van het onderzoek is om aan te tonen dat met behulp van koude plasmatechnologie NO_x uit een luchtstroom kan worden verwijderd. Koude plasma wordt opgewekt met behulp van gepulste Corona techniek. De mate waarin dit gebeurt en met welk rendement is daarbij cruciaal, omdat een te laag verwijderingsrendement alsnog leidt tot aanzienlijk emissie vanuit een tunnelmond en daarbij het effect van een tunnelventilatiesysteem teniet wordt gedaan.
Doelstelling is een verwijderingsrendement van minimaal 80% op NO_2. Voor aanwezig NO zal het verwijderingsrendement waarschijnlijk hoger zijn.
Additioneel aan NO_x verwijdering zal in het onderzoek ook aandacht worden besteed aan de simultane verwijdering van PM_{10} met de Corona reactor.

2.2 Achtergrond

Beschrijving van de Corona installatie en het werkingsprincipe

Bij de Faculteit Electrical Engineering van de Technische Universiteit Eindhoven is de groep “Electrical Power Systems” actief op het gebied van “Corona-plasma technologie”. Deze onderzoeksgroep heeft in haar Pulsed Power Lab de afgelopen 15 jaar veel kennis opgebouwd van “Corona-plasma en aanverwante technologie”. Het betreft een elektrische procestechnologie door toepassing van hoogspanningspulsen op een set elektroden binnen een reactor. Hierdoor ontstaat in de reactor een wolk van mini vonkjes, een zogenaamde corona-ontlading. Deze wolk van vonkjes produceert continu actieve deeltjes zoals elektronen, ionen en radicalen. De actieve deeltjes initiëren fysische en chemische processen die vervolgens leiden tot conversie van o.a. koolwaterstoffen, NOx, geurcomponenten of tot inactiveren van micro-organismen of tot filteren van fijnstof. Toepassingen van deze technologie liggen vooral op het terrein van verkeersemissies, de reductie van geur en ammoniak, fijnstof en vluchtige chemische componenten in luchtstromen, het inactiveren van micro-organismen in lucht en water en afvalwaterreiniging, en meer in de toekomst, elektrisch-geactiveerde katalysatoren, biogas conditionering, plasmaconversie en plasma-assisted combustion.

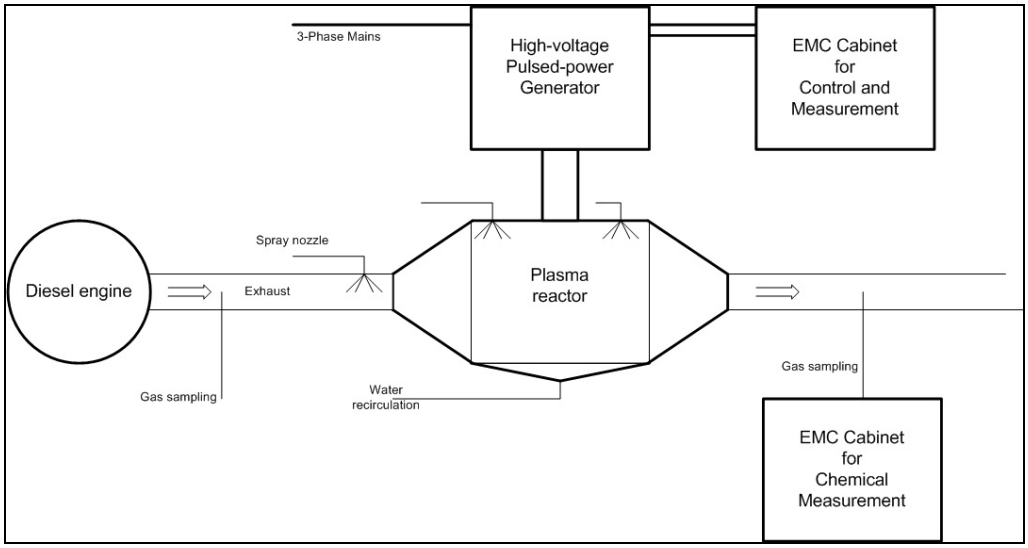
De techniek kan worden toegepast in diverse bedrijfstakken: verkeerstunnels, intensieve veehouderij, petrochemie, voedings- en genotmiddelenindustrie, composteerbedrijven, mestverwerkingsbedrijven, afvalverwerkingsbedrijven.



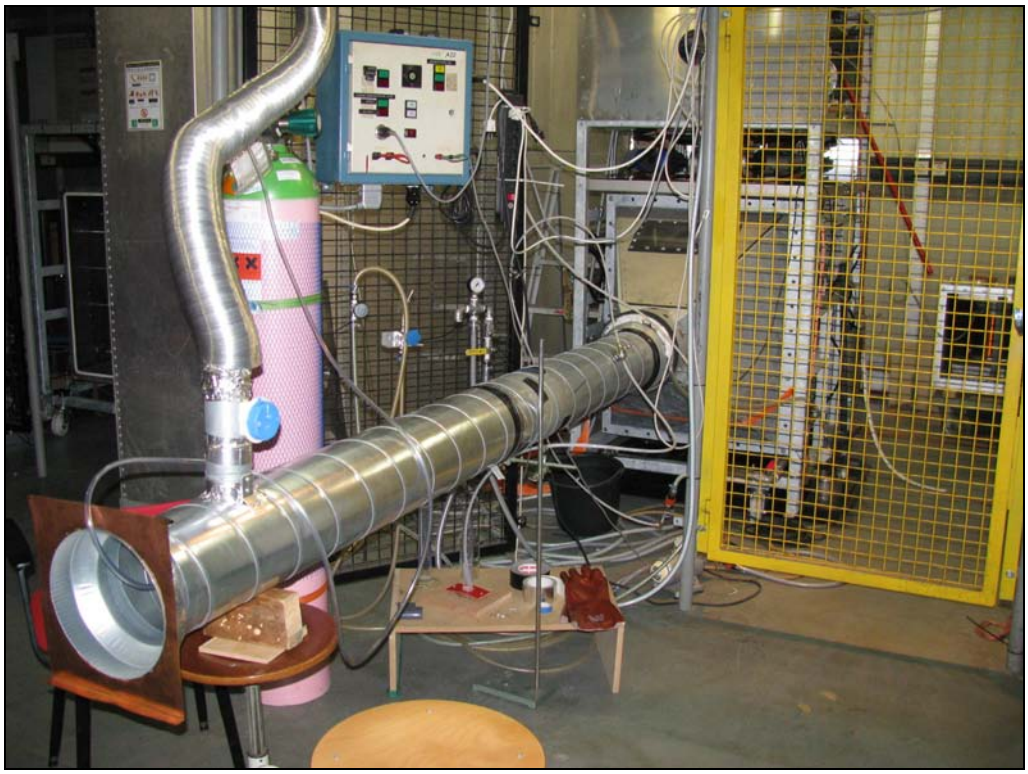
Figuur 2.1 Principeschema van de Corona reactor

Voor verwezenlijking van deze technologie is een systeem nodig dat bestaat uit een hoogspanningsvoeding en een reactor.
De hoogspanningsvoeding is een apparaat dat continu elektrische pulsen maakt van hoog piekvermogen, wel zo'n 70 MW maar met een extreem korte pulstijd in ordergrootte van enkele tientallen nanoseconden. Deze pulsen worden continu herhaald, tot duizend keer per seconde. Via een hoogspanningsdoorvoer gaan de pulsen naar de reactor. Daar maken ze in het aanwezige gas elektronen vrij die door de puls voldoende energie meekrijgen om de benodigde chemische reacties op gang te brengen. Dit is chemie met behulp van elektronen, zonder thermische verhitting van het gas. Omdat het gas koud kan blijven kost coronachemie veel minder energie dan conventionele chemie.
Het te behandelen gas stroomt door de reactor. In de reactor is een systeem van metalen platen en metalen draden of kammen aangebracht. Dit systeem vormt de elektroden waaraan in feite de elektrische pulsen toegevoerd worden. Zie figuur 2.1 met de basisopzet van een systeem voor corona-plasma luchtreiniging. In dit geval is de reactor een cilinder met een draadelektrode op de as.
In de reactor is ook een systeem van watersproeiers opgehangen. Het water heeft een gunstig effect op de chemische processen en vormt tevens het transportmechanisme voor de afvoer van vaste deeltjes en gevormde zouten.
Nog nader ingaand op de chemie met behulp van een coronareactor kunnen we het volgende toevoegen:
Het basismechanisme van deze chemie is het klieven van moleculen door botsingen met snelle elektronen. Dat zijn de door de puls vrijgemaakte elektronen. De snelheid die deze elektronen meekrijgen is een belangrijke parameter. De pulsvorm bepaalt in hoge mate deze parameter. Als snelheid van de elektronen een specifieke drempel overstijgt kunnen ze de zuurstofmoleculen splitsen in twee zuurstofradicalen en water in een waterstofdeeltje en een hydroxylradicaal. Zuurstofradicalen en hydroxylradicalen zijn uitermate geschikt om een veelheid aan chemische processen te laten plaatsvinden. Het hydroxylradicaal is op Fluor na de meest reactieve chemische component.

Opstelling van de proefreactor



Figuur 2.2 Schematisch overzicht van de proefopstelling bij de TU Eindhoven



Figuur 2.3 Situatie van de Corona proefopstelling bij de TU Eindhoven

3 Opzet van het onderzoek

Omdat er diverse wegen open staan om het onderzoek vorm en inhoud te geven, wordt eerst een theoretische benadering gemaakt van het te tackelen probleem. Literatuur geeft aan dat NO_2 verwijdering met koude plasma tot de mogelijkheden behoort, echter niet hoe je dat praktisch vorm geeft. Daarom wordt nagegaan welke nadere randvoorwaarden een succesvolle verwijdering vereist;
De randvoorwaarden worden vertaald naar benodigd equipement en ook naar de vraag welke minimale energiedichtheid in J/l nodig is voor een (volledige) NO_2 verwijdering.
De eenheid Joule per liter lucht (J/l) is gekozen als maat voor de energietoevoer naar de in de reactor te behandelen luchtstroom. Het gaat dus om de hoeveelheid energie per liter gas. De hoeveelheid NO_x die per eenheid van energie kan worden verwijderd wordt dan uitgedrukt in ppm NO_x/(J/l). Het achterhalen van de mechanismen die aan NO_2 verwijdering ten grondslag liggen, vormt de kern van het onderzoek.
Bij voorkeur moet een vochtige of waterdampverzadigde luchtstroom met NO_2 worden gegenereerd waarmee de demonstrator/proefopstelling wordt gevoed. Zonder voldoende H_2O in de luchtstroom is de afbraak van NO_2 waarschijnlijk niet (volledig) mogelijk. In het onderzoek wordt ook de mogelijkheid van andere toevoegingen bekeken, zoals NH_3 en/of NaOH;
Als externe bron voor de rendementsmetingen van NO_2 en PM_{10} verwijdering wordt een dieselgenerator gebruikt (vanwege de aanwezigheid van PM 10 in de uitlaatgassen) terwijl voor het onderzoek naar de mechanismen die tot NO_2 verwijdering leiden, tevens van een zuivere NO bron gebruik wordt gemaakt
Metingen aan ingaande en uitgaande lucht vinden plaats met een NO_x analyser;
pH metingen vormen indirect een maat voor de afbraak van NO_2 door de aanwezigheid van HNO_3 in de uitgaande luchtstroom of in het condenswater in de reactor.

3.1 Detailopzet in het onderzoek

Vanwege de wens om snel uitsluitsel te krijgen of de Corona technologie in principe NO_2 kan verwijderen met een redelijk rendement, heeft fasering van het onderzoek niet zo veel zin. Wel worden de omstandigheden waaronder verwijdering gerealiseerd kan worden stapsgewijs opgebouwd. Daarbij worden de volgende deelonderzoeken in het NO_2 verwijderingsonderzoek uitgevoerd:

1. verwijdering uit "droge" lucht = referentie verwijderingsniveau;
2. verwijdering uit water(damp)verzadigde (natte) lucht via voorschakeling van waterdampdiffusoren en waterverneveling;
3. toepassing van simultane NaOH injectie in natte lucht;
4. toepassing van een waterfilm op de aardplaten van de reactor
5. toepassing van NH_3 injectie in natte lucht;
6. combinatie van NH_3 toepassing en waterfilm;
    - naschakeling van een demister systeem voor afvang van de waterfase uit de lucht bij deelonderzoeken 2,3,4,en 5;
    - analyse van de verwijderde waterfase op HNO_3 aanwezigheid; pH controle, watermonsteranalyses;

Het bevochtigen van de lucht heeft tot doel om de vorming van voldoende OH * radicalen mogelijk te maken. Het onderzoek moet uitwijzen of extra vochtdosering in de vorm van waterdruppels of waterverneveling significant positief effect heeft ten opzichte van"droge" lucht met NO_x.
Toeslag van NaOH of NH_3 heeft tot doel de oplosbaarheid van het uit NO en NO_2 gevormde HNO_3 te bevorderen (zie ook fig 5.1). NH_3 veroorzaakt ook een aantal extra chemische reactiepaden, hetgeen een gunstig effect kan hebben op de conversie van NO_x.

Het luchtdebiet is als een variabele waarde tussen 100-1500 m^3/uur ingesteld waarbij de NO_x bron als vaste emissie wordt gehanteerd. Met het opvoeren van het vermogen van de gepulste corona reactor wordt de energiedichtheid in het koude plasma gevarieerd.
Het ingesteld debiet is een van de factoren die bepaalt of de reactor volledig wordt benut en houdt verband met de doorloopsnelheid van de lucht in de reactor.

Aandacht voor PM10/PM2,5
In het onderzoek is primair gekeken naar de verwijderingsmogelijkheden van NO_x zoals boven beschreven. Daarnaast heeft bij de ideale opstelling voor NO_x ook monstername plaatsgevonden waarmee de simultane verwijdering van stof/PM_{10} en NO_2 met Corona technologie kan worden bepaald. In overleg met het in te zetten meetbureau voor de stofmetingen is gekozen voor een totaal stofmeting aangezien verbrandingsemissies vrijwel volledig uit PM_{10} bestaan.
De meting aan PM_{10} is qua reikwijdte en representativiteit beperkt door het feit dat alleen verbrandingsgassen van dieselmotor worden onderzocht en niet het totaal aan fijnstof dat op een wegvak/tunnel door o.a. bandenslijtage en opwerveling van deposities in de lucht aanwezig is.

Rapportage
Naast de technische ins en outs van de proeven vindt ook een doorvertaling plaats naar de praktijk:

- De meerwaarde van toepassing bij tunnelmonden zal worden geïndiceerd. Het overall rendement dat wordt bereikt en waarbij naast NO_x ook fijn stof zal mee precipiteren in de reactor wordt kwalitatief en waar mogelijk kwantitatief aangezet.
- Op basis van het recent uitgevoerde onderzoek naar tunnelventilatie zal de concentratie NO_x en PM_{10} rond de tunnelmond en in de tunnel in relatie worden gebracht met wel of niet gebruik van Corona technologie als verwijderingstechniek in combinatie met tunnelventilatie. De opsluiting van de verontreinigde lucht middels tunnelventilatie met een bepaald percentage lek (als % van de vracht) via de tunnelmonden is al gemodelleerd in onderhavige studie. Met de bereikte rendementen op verwijdering van NO_x en PM_{10} uit het NO_x/PM_{10} onderzoek kan met een eenvoudige extra berekening leiden tot de reële getallen m.b.t. de eindsituatie aan de tunnelmond en in de tunnel.
- Doorvertaling naar energiegebruik, ruimtegebruik van een full scale installatie zal kwalitatief worden beschreven. Het energiegebruik van het Corona proces zal indicatief worden aangegeven en houdt mede verband met het debiet dat het tunnelventilatieconcept oplevert, bij een aangenomen maximum concentratie die in de tunnel zou kunnen worden gehandhaafd.
- Een indicatie van de investeringskosten van een full scale installatie wordt mede gebaseerd op de uitkomsten van de lopende studie naar de tunnelventilatieconcepten.

3.2 Samenstelling van tunnellucht

Tunnellucht bij langere tunnels heeft onder normale omstandigheden een NO_x niveau van 250-500 ppb (ca. 500-1000 mg/m^3). Bij kortere tunnels liggen deze concentraties veel lager.
Voor de proeven wordt uitgegaan van een hoge concentratie NO_x van 30 ppm (ca. 56 mg/m^3) die in tunnels kan worden bereikt indien gerichte tunnelventilatie wordt toegepast waarbij door recirculeren van tunnellucht een verhoging van concentraties verontreinigingen optreedt.
De proeven richten zich primair op NO_x verwijdering. Daarnaast wordt indicatief onderzocht welk effect Corona heeft op fijn stof. De hoeveelheid PM_{10} in de uitlaatgassen

van de gebruikte dieselgenerator is niet gemeten en wordt verondersteld vergelijkbaar te zijn met de emissie van een vrachtwagenmotor.
In tunnellucht zal bij een concentratie van 30 ppm NO_x fijn stof een orde grootte van een factor 18 lager liggen dus op ca. 2 ppm PM_{10}. Bij de fijn stof metingen worden alleen de waarde in het ingangskanaal en na de reactor vastgelegd waarmee een enkelvoudige rendementsmeting wordt uitgevoerd.
CO is een niet kritische parameter in tunnellucht. Uit metingen is wel gebleken dat de dieselgenerator in onbelaste toestand veel CO emitteert. In belaste toestand is die emissie gering.

Behalve NO_x, PM_{10} en CO is nog een aantal parameters van belang: C_xH_y en RV (Relatieve Vochtigheid).

CxHy
In het uitlaatgas bevinden zich de verschillende koolwaterstoffen met de diverse specifieke eigenschappen:

- Verzadigde koolwaterstoffen (paraffinen) zijn nagenoeg reukloos, hebben een bedwelmende werking en veroorzaken een lichte irritatie van de slijmvliezen.
- Onverzadigde koolwaterstoffen (olefinen en acetyleen) hebben een zoetige geur en veroorzaken ook een irritatie van de slijmvliezen. Ze zijn voor een groot deel verantwoordelijk voor de smogvorming: Door de aanwezigheid van NO en onder invloed van zonlicht reageren de onverzadigde koolwaterstoffen tot oxidanten, die de slijmvliezen irriteren, terwijl ook ozonvorming optreedt.
- Aromatische koolwaterstoffen hebben een karakteristieke geur; ze staan bekend als zenuwgas met een verdovende en kanker veroorzakende werking.
- Aldehyden (vb. formaldehyde) ruiken scherp en hebben al in geringe concentraties een sterk prikkelende werking op neus en ogen.

Vocht en relatieve vochtigheid van tunnellucht
Ten aanzien van de specifieke RV van tunnellucht zijn geen gegevens beschikbaar. Dit hangt nauw samen met het weer. Regenachtig weer veroorzaakt veel water op de weg in de tunnel en daarmee ook veel opspattend water en waterdampvorming door de warme bronnen (uitlaten, motoren) in de tunnel.
Dat er zich vocht in de tunnellucht bevindt blijkt uit de volgende opmerking die de bouwdienst van RWS geeft t.a.v. systemen in tunnels:

> Binnen armaturen kunnen vrij grote temperatuurverschillen ontstaan t.o.v. de buitenlucht. Dit kan onderdruk binnen het armatuur veroorzaken waardoor opening wordt belemmerd, maar ook kan via onbedoelde lekkages verontreinigde **en vochtige tunnellucht** worden aangezogen, hetgeen snelle vervuiling van het inwendige van het armatuur tot gevolg heeft. Daarom mogen armaturen binnen een tunnel niet volledig gasdicht worden uitgevoerd, maar moeten worden voorzien van een ademend filter (labyrint en/of semi-permeabel membraan).(Bron: Specifieke Aspecten TunnelOntwerp / versie 2005; RWS bouwdienst)

4 Uitgangspunten bij het onderzoek

1. Het maximale concentratieniveau van NO_x dat in het onderzoek wordt betrokken wordt afgeleid uit de resultaten van de recent afgeronde studie naar effecten van tunnelventilatie op de gezondheid. Dit betekent dat primair van een NO_x niveau tussen 2.000 en 30.000 microgram/m^3 (2 - 30mg/m^3) wordt uitgegaan. In de praktijk van de proeven wordt gekozen voor een uitgangsniveau van 30 ppm NO_x (ca. 56 mg/m^3) vanwege detectieniveau's in de uitgaande lucht bij hoge verwijderingspercentages.
2. Het onderzoek is uitgevoerd aan de hand van de gepulste corona demonstrator/reactor die in samenwerking met TU/e door Oranjewoud is ontwikkeld. Eerdere tests hebben uitgewezen dat verwijdering van NO mogelijk is. Deze tests worden herhaald en uitgebreid met de verwijderingstap voor NO_2. Als bron wordt NO_x (in feite een mix van NO en NO_2 die uit een dieselgenerator vrij komt) als directe externe bron toegepast.
3. De uitvoering is in handen van Oranjewoud/HMVT en vindt plaats binnen het samenwerkingsverband met de TU/e.
4. Specifiek voor dit onderzoek zal de demonstrator/reactor worden aangepast met de nodige apparatuur om de juiste condities voor NO_2 afbraak te kunnen bereiken. Met name het toevoegen van vocht en hulpstoffen vereist aanpassingen in de vorm van diffusoren en vernevelingsapparatuur. Voor het bedrijven van de reactor in natte toestand worden de aardplaten bevochtigd door middel van sproeibuizen boven in de reactor.

5 Beschouwingen

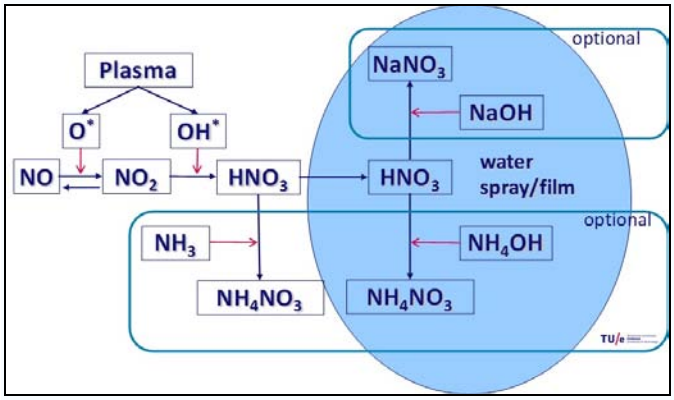
5.1 Theoretische benadering van het verwijderingsproces

Vanuit de chemische wetmatigheden is een aantal deelprocessen onderscheiden dat in de opgewekte koude plasma een rol speelt. Een deel van die processen speelt zich af in de luchtfase, een deel ook in de waterfase, waterdamp en/of waternevel (zie ook par. 5.3). Tot slot vindt afvoer van afbraakproducten in het koude plasma plaats via een waterfilm die over de aardplaten loopt.
NO wordt met behulp van O* radicalen omgezet naar NO_2. Op het moment dat alle NO is omgezet ontstaat er O_3 in de reactor. Deze O_3 vorming is inherent aan het proces en heeft in de praktijk nog een nuttige functie doordat het zal reageren met onverbrande koolwaterstoffen C_xH_y in de uitlaatgassen in tunnels.
Parallel aan de NO omzetting verloopt de NO_2 omzetting die plaatsvindt m.b.v. OH* radicalen. Daarmee wordt HNO_3 gevormd dat gasvormig is en in de luchtfase blijft of opgenomen wordt in de aanwezige waterdruppels*). Aangenomen wordt dat door het aanwezige elektrische veld deze waterdruppels naar de aardplaten worden gedreven en via de waterfilm worden afgevoerd uit de reactor. Het mechanisme rondom HNO_3 -vorming is nog onderwerp van nadere studie. De diagnostiek om HNO_3 in de luchtfase aan te tonen ontbreekt op dit moment. Het aantonen van HNO_3 in de waterfase (pH meting) is in de praktijk wel mogelijk maar in de pilotopstelling is door de geringe hoeveelheid HNO_3 in het waterbassin geen significante hoeveelheid aantoonbaar.

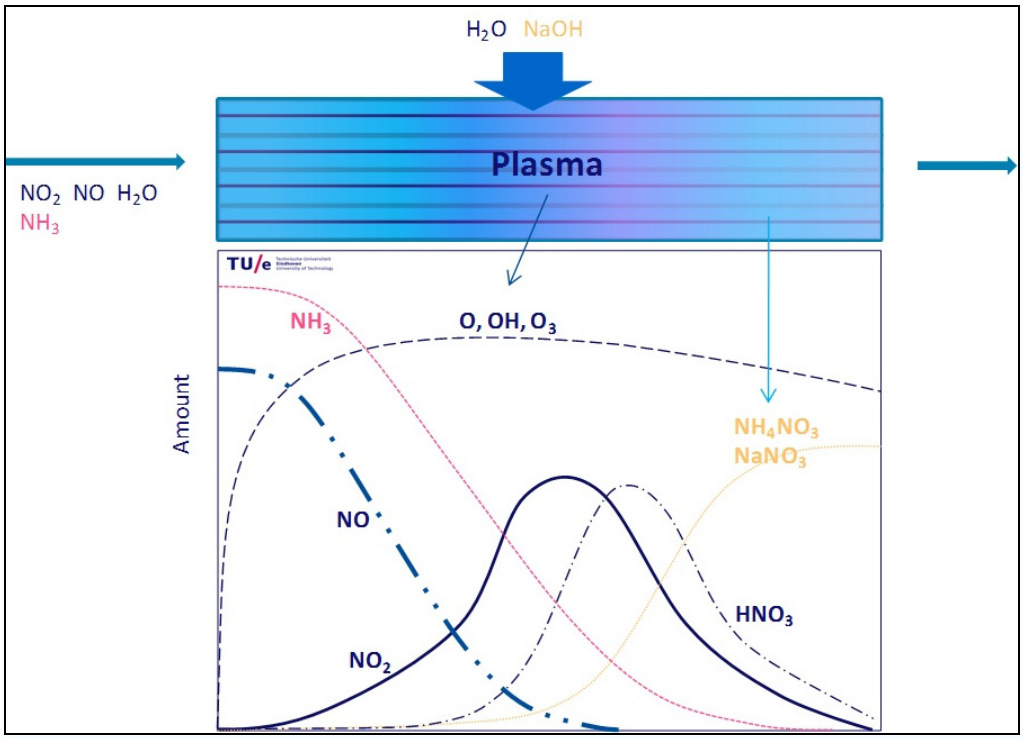
*) Salpeterzuur (HNO_3) is een sterk zuur dat veel technische toepassingen kent.

Salpeterzuur is een van de belangrijkste anorganische zuren. Men kan het zuur opvatten als opgebouwd uit distikstofpentaoxide, N_2O_5, en water, H_2O. Het stikstofatoom is daarom in zijn hoogste oxidatietoestand (+5) en de verbinding is naast een sterk zuur ook een sterke oxidator.
Het is volledig mengbaar met water en dissocieert daarin quasi volledig :
HNO_3 (l) + H_2O (l) → H_3O^+ (aq) + NO_3^- (aq)

Een schematische weergave van de optredende processen is in figuur 5.1 opgenomen. Op grond van theoretische beschouwingen en de metingen die zijn uitgevoerd kan een voorlopig proces ontwerp worden opgesteld waarmee de processen in het plasma kunnen worden uitgebeeld. Dit procesontwerp is in Figuur 5.2 weergegeven.



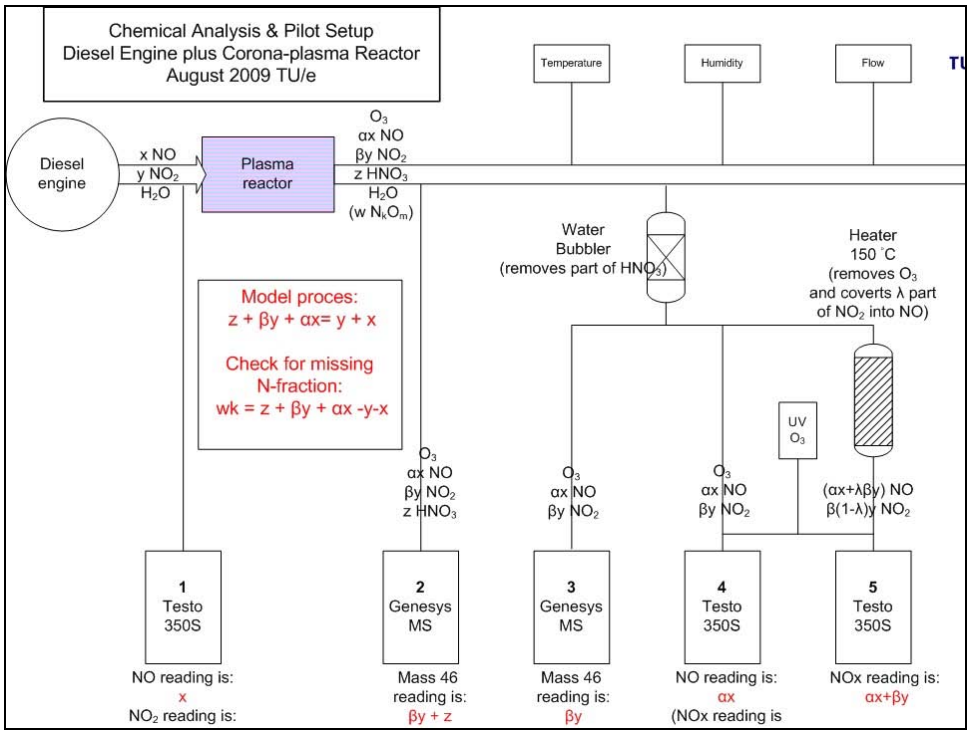
Figuur 5.1 Optredende processen in het Corona-plasma



Figuur 5.2 Plasma NO_x process design

5.2 Kruisgevoeligheid in de metingen

De proeven die gedaan zijn met NO injectie in een droge corona reactor leiden in eerste instantie wel tot afbraak van NO naar NO_2, echter er wordt geen verdere afbraak van NO_2 gemeten.
Nader onderzoek wijst uit dat er sprake is van kruisgevoeligheid van NO_2 met O_3 bij de gebruikte Testo 350 fluegas analyzer die we gebruiken om de concentratie NO_2 te meten. De meetnauwkeurigheid van de gebruikte Testo apparatuur op zichzelf ligt op ca. 98%. Daarmee zijn rendementsberekeningen tot op enkele %-en nauwkeurig te bepalen.
Er is in de literatuur gezocht naar een oplossing om de O_3 in de sample leiding af te breken zonder de concentratie NO_2 te beïnvloeden (thermisch, UV licht , chemisch filter). Het sample verhitten tot 140 ºC lijkt goed te werken. De O_3 kan volledig worden afgebroken, maar de NO_2 wordt tevens voor een groot deel omgezet in NO (thermische dissociatie).
De concentratie NO_2 kan indirect echter wel gemeten worden. Door eerst de concentratie NO zonder voorverwarmen van het sample te meten, en vervolgens de concentratie totaal NO_x van het voorverwarmde sample te meten. De NO_2 concentratie volgt uit het verschil van de twee metingen. Meetafwijking ligt in de orde van 5 tot 10%.
Via deze indirecte meetmethode worden de concentraties in de behandelde lucht gedurende alle proeven bepaald. Rendementsbepalingen zijn daarmee op ca. 5% nauwkeurig.
Dit leidt tot een schematische weergave van de diagnostiek in Figuur 5.3 zoals deze tijdens de proeven is toegepast.

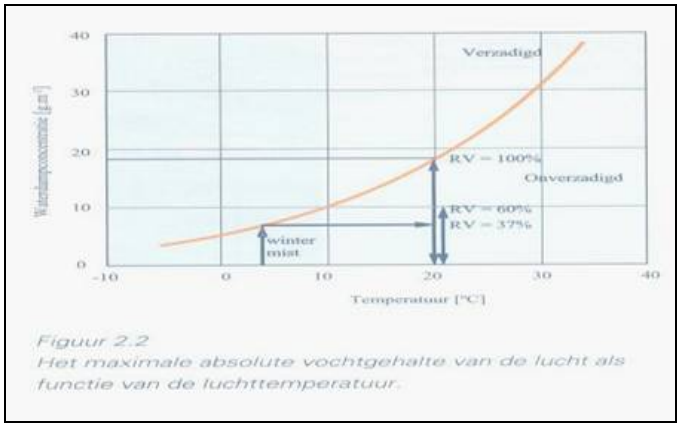


Figuur 5.3 Diagnostiek tijdens de proeven

5.3 Vocht en waterdamp in een natte corona-omgeving

De vraag is hoeveel water(damp) aanwezig moet zijn om een goede werking van een natte corona-omgeving te bereiken. M.a.w. hoeveel OH radicalen moeten aangemaakt kunnen worden. Er zijn indicaties dat in lucht met een hoge luchtvochtigheid de afbraak van NO_x beter verloopt. In hoeverre het daarbij gaat om een absolute hoeveelheid waterdamp per m^3 lucht of om de relatieve vochtigheid RV of de aanwezigheid van fijne waterdruppels (aerosolen) is niet duidelijk. Om lucht te bevochtigen (indien er sprake is van te droge lucht voor een goede NO_x verwijdering) staan twee wegen open: water verdampen zodat de RV toeneemt of water vernevelen.

De proeven met NO_2 verwijdering geven indicaties van de benodigde hoeveelheid water in de lucht in de reactor. Meer fundamenteel wetenschappelijk onderzoek naar de fenomenen die zich in de natte reactor afspelen, valt buiten de scope van dit onderzoek.



Bron: energieadviesbureau EPN;ventilatie/vocht en ventilatie

Figuur 5.4 Waterdamp verzadigingsdiagram, afgeleid van de psychrometrische grafieken in figuur 5.5

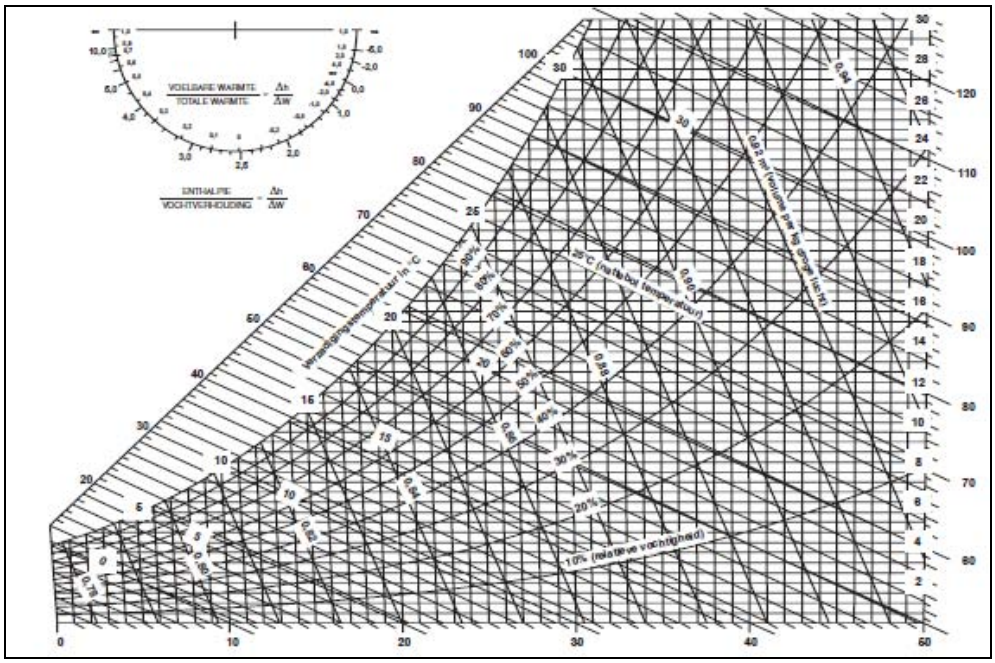
Nadere beschouwing van de waterproblematiek in de te behandelen tunnellucht vindt plaats aan de hand van een waterdamp verzadigingsdiagram van lucht in figuur 5.4.

Energiegebruik bij luchtbevochtiging

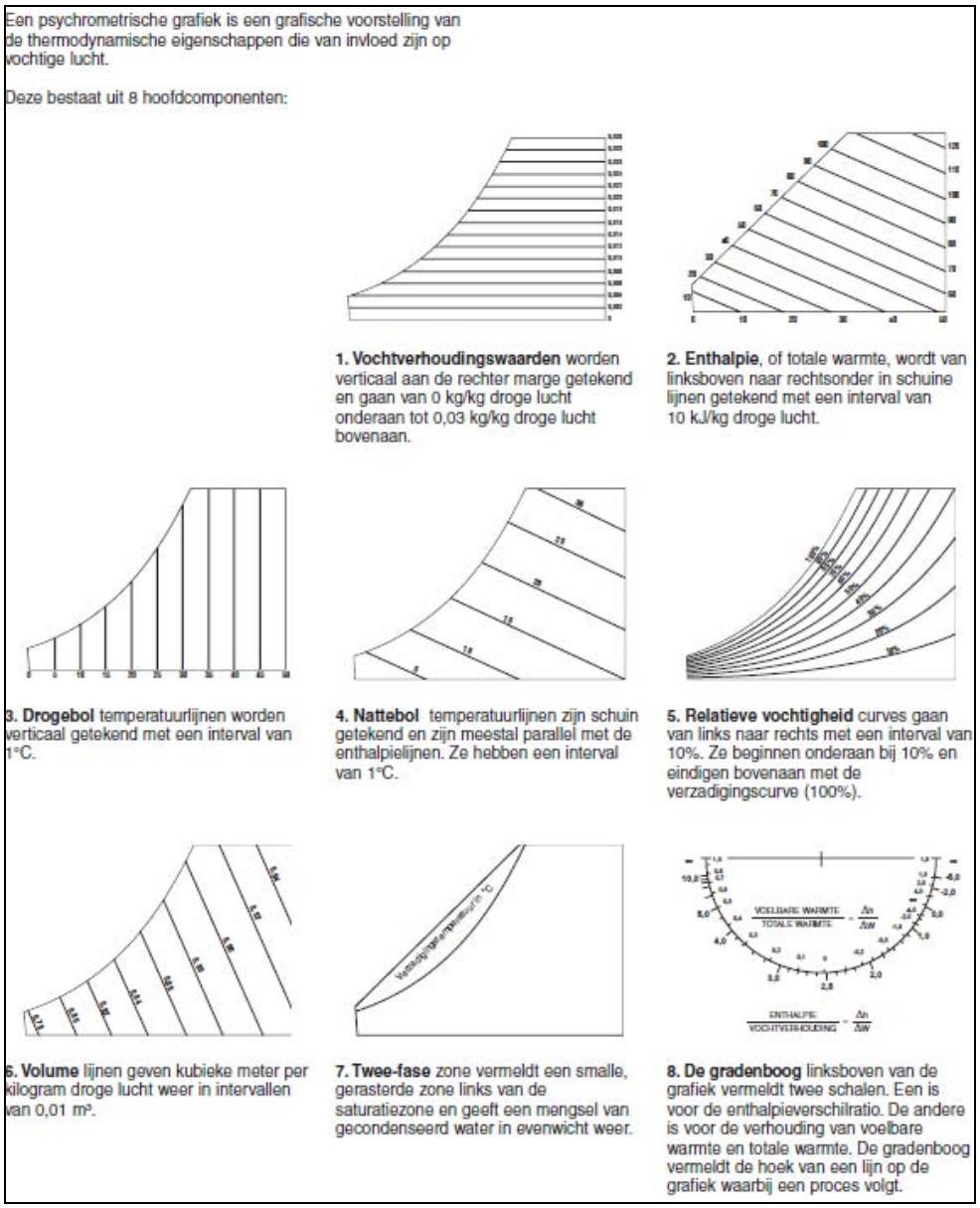
Lucht bevat bij 20 ˚C max. 17 g/m^3 waterdamp. Bij 25 ˚C en 100% RV is dat al ca. 23 gr/m^3
Een RV van 60% betekent bij 20 ˚C 10 g/m^3 waterdamp. (zie figuur 5.4)
Om bij lucht van 80 % RV water te verdampen naar verzadigingswaarde bij 20˚C is 0,2x17 g/m^3 water nodig ofwel 3,4 gr/m^3 lucht.
Om 1 gr water/m^3 lucht te verdampen is verdampingswarmte nodig van 2256 kJ/kg ofwel 2256 J/gr. 1 kWh=3,6 MJ.
De verdampingswarmte van 2,256 MJ/kg water betekent dus een energieverbruik van 2,256/3,6 kWh/kg water ofwel 0,62 kWh /liter water die verdampt moet worden.
Wanneer het gaat om duizenden m^3 lucht per uur is het extra bevochtigen van de lucht vanuit energetisch oogpunt geen optie.

Waterverneveling

Wel kan door water fijn te vernevelen een effect ontstaan dat de lucht afkoelt bij gelijktijdige verdamping van de fijne waternevel. Wanneer de lucht afkoelt van stel 25 ˚C in de tunnel naar 15˚ C in de reactor zal de max. hoeveelheid waterdamp die aanwezig kan zijn dalen van 23 g naar ca. 14 g/m^3. Indien de luchtvochtigheid in de tunnel 70% is, met een bijbehorende hoeveelheid waterdamp van 0,7x23 = 16,1 g/m^3, zal bij afkoelen naar 15 ˚C een situatie van condensatie van waterdamp ontstaan omdat bij 15 ˚C de hoeveelheid waterdamp in lucht maximaal 14 g/m^3 kan bedragen.
Het zeer fijn vernevelen van water zodat verdamping aan de lucht kan optreden zal dus een positief verhogend effect hebben op de RV van de lucht in de reactor waarbij deze zal afkoelen.



bron: www.hygrotemp.nl/.../Humidification%20Guidelines%20NL.pdf
Figuur 5.5a Psychrometrische grafieken



bron: www.hygrotemp.nl/.../Humidification%20Guidelines%20NL.pdf

Figuur 5.5b Psychrometrische grafieken

6 Literatuuronderzoek

Wereldwijd is er onderzoek naar corona-plasma en aanverwante technieken voor de verwijdering van verontreinigingen uit luchtstromen. Er is een enorme verzameling van publicaties over verwijdering van een scala aan stoffen. Voorbeelden zijn verwijdering van tolueen, etheen, ammoniak, waterstofsulfide , NO_x, SO_2, dioxines, geur, en meer.
Op het gebied van NO_x verwijdering met coronatechniek is er ook een breed scala aan literatuur voorhanden.
De meeste publicaties betreffen onderzoek naar de mogelijkheden van verwijdering van NO_x uit de rookgassen van energiecentrales. Er zijn ook onderzoeken met de rookgassen van een gasmotor, een vuilverbrander, ijzererts sintering, en synthetisch rookgas.
Veel van de onderzoeken zijn beperkt in een aantal aspecten:

1. De benodigde energie voor de reductie van NO of NO_2 wordt niet gegeven;
2. Alleen NO verwijdering is onderzocht;
3. Er is een katalysator toegevoegd om de gewenste verwijdering te bereiken;
4. Resultaten over NO_2 verwijdering worden vaak niet vermeld;
5. Daar waar resultaten over NO_2 verwijdering wel worden vermeld blijkt dat er of veel energie nodig is, of een zeer matige verwijdering wordt behaald of dat er sprake is van toevoeging van een katalysator;
6. Er wordt niet goed onderzocht welke de relaties zijn tussen de belangrijke proces parameters: concentratie, verwijderingspercentage, verblijftijd, plasma energie, debiet, puls parameters.

De referentielijst onderaan deze paragraaf bevat een selectie met de meest relevante literatuur. De volgende (oud)medewerkers van de onderhavige groep van de TU Eindhoven zijn in enkele gevallen (mede)auteur van een of meer van de vermelde publicaties: Yan, Blom, Pemen, Smulders, Winands, van Heesch.
Het meest relevante dat uit de literatuur naar voren komt is samengevat in de volgende geciteerde afbeeldingen:

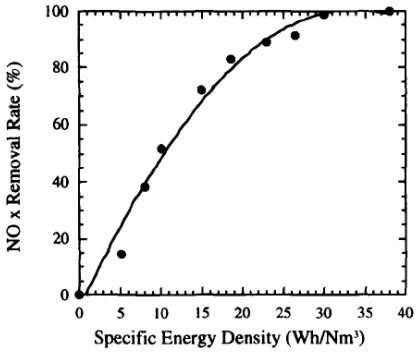


Fig. 7. NO_2 removal with an eight-nozzle electrode under following conditions: [NO] = 3 ppm, $[NO_2]$ = 85 ppm, $[CO_2]:[O_2]:[H_2O]:[N_2]$ = 1.2:14.6:1.0:83.2.

Uit de publicatie van onze oud medewerker Keping Yan (referentie lijst nr 4).
NO_x verwijdering is mogelijk, getuige deze publicatie, het is alleen wel duur, 20Wh/m^3, dat is 72 J/l voor 80% verwijdering.

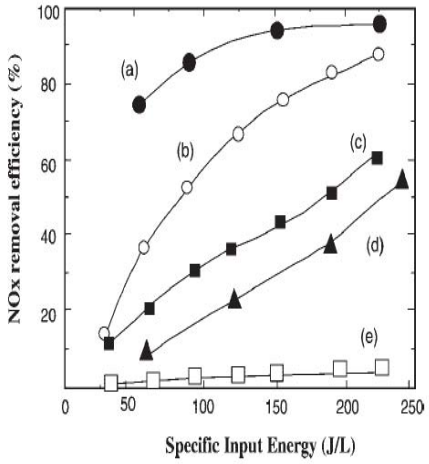
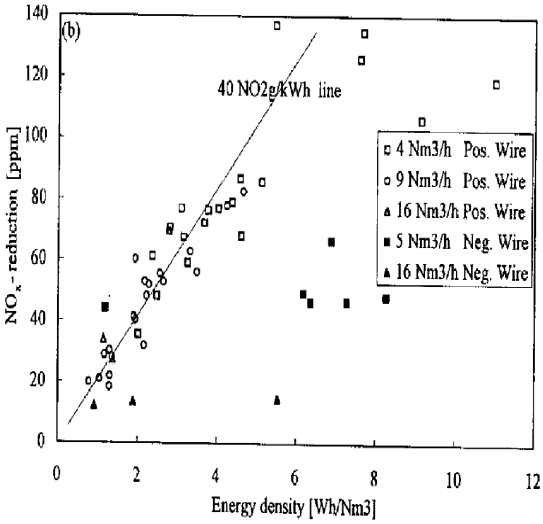


Figure 14. Comparison of NO_x removal between the conventional pulsed corona and the PDC reactors with different packing materials: (a) $TiO_2 + H_2O_2$ (1 000 ppm); (b) TiO_2 + dry; (c) pulsed corona with H_2O_2 (5 000 ppm), (d) non-porous $Al_2O_3 + H_2O_2$ (1 000 ppm); (e) pulsed corona under dry conditions. The specific input energy shown here is based on the plug-in input power.

Deze grafiek komt uit publicatie 13. Het geeft aan dat bij deze groep de NO_x verwijdering heel moeizaam gaat. Zij moeten katalysatoren en waterstofperoxide toevoegen om een enigszins acceptabel rendement te verkrijgen.



Deze resultaten worden gegeven in het proefschrift van Blom, publicatie 2. Dit is een goed rendement van ca. 5 ppm NO_x verwijdering per J/L. Wel moet hier bij vermeld worden dat dit bij een hoge concentratie NO_x werd bereikt (350 ppm).

Het volgende kan geconcludeerd worden:

1. Veel van de onderzoeken geven alleen resultaten voor NO verwijdering. De effectiviteit van de corona DeNOx, dus inclusief NO_2 verwijdering is maar in enkele gevallen gerapporteerd. De verschillen in de resultaten zijn significant: de benodigde energiedichtheden voor NO_x verwijdering lopen uiteen van 20 J/l tot 200 J/l.

2. Een verklaring voor deze verschillen moet gezocht worden in verschillen in procescondities. Omdat deze bijna nooit volledig gerapporteerd worden kunnen we alleen de meest waarschijnlijke oorzaken noemen nl. verschil in reactor geometrie, in pulsbron en in meet- en interpretatiemethoden.

Referenties

1. A Mizuno, K Shimizu, T Matsuoka, S Furuta, Reactive absorption of NOx using wet discharge plasma reactor, IEEE Transactions on Industry Applications Vol 31 No 6, 1995
2. P.P.M. Blom, "High-Power Pulsed Corona", Ph. D. Thesis, Eindhoven University of Technology, (1997.)
3. H.W.M. Smulders, E.J.M. van Heesch, S.V.B. van Paasen, Pulsed Power Corona Discharges for Air Pollution Control, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 26, No. 5, pp. 1476-1484, October 1998
4. K Yan, S Kanazawa, T Ohkubo, Y Nomoto, Oxidation and reduction processes during NO x removal with corona-induced nonthermal plasma, Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol 19, No 3,1999
5. K. Yan, S. Kanazawa, T. Ohkubo, Y. Nomoto, NO to NO2 and nitric acid conversion by corona induced non-thermal plasmas and H2O2 scrubbing, Trans. IEE of Japan, Vol 119A, No 7, 1999
6. E.M. van Veldhuizen (editor), "Electrical Discharges for Environmental Purposes: Fundamentals and Applications", New York: Nova Science, ISBN 1-56072-743-8, (1999)
7. EA Filimonova, RH Amirov, HT Kim, IH Park, Comparative modeling of NOx and SO2 removal from pollutant gases using pulsed-corona and silent discharges, J.Phys. D, Vol 33, 2000
8. R. Hackam, H. Akiyama, "Air pollution control by electrical discharge", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation 7, No. 5, pp. 654-682, (2000)
9. R. Hackham and H. Akiyama, "Application of Pulsed Power for Removal of Nitrogen Oxides from Polluted Air", IEEE Electrical Insulation Magazine 17, pp. 8-12, (2001)
10. K. Yan, E. J. M. van Heesch, A. J. M. Pemen and P. A. H. J. Huijbrechts, From Chemical Kinetics to Streamer Corona Reactor and Voltage Pulse Generator, Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 21, No. 1, 2001
11. Yong-Hwan Lee, Won-Suk Jung, Yu-Ri Choi, Jong-Seok Oh, Sung-Duck Jang, Yoon-Gyu Son, Moo-Hyun Cho, Won Namkung and DJ Koh, YS Mok, JW Chung, Application of pulsed corona induced plasma chemical process to an industrial incinerator, Environ. Sci. Technol., 2003, 37 (11), pp 2563–2567, 2003
12. Kim, You-Seok, Paek Min-Su, Yoo Jeong-Seok1, Kim Tae-Hee, Choi Seok-Ho, Moon Kil-Ho, Development of Demonstration Plant Using Non-thermal Plasma Process to Remove SO2 and NOx from Flue Gas, Journal of Advanced Oxidation Technologies, Volume 6, Number 1, January 2003
13. H-H. Kim, "Nonthermal Plamsa Processing for Air-Pollution Control: A Historical Review, Current Issues and Future Prospects", Plasma Processes and Polymers 1, pp. 91-110, (2004)
14. Akiyama, H. Sakai, S. Sakugawa, T. Namihira, T. , Environmental Applications of Repetitive Pulsed Power, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol 14, No 4, Aug. 2007
15. G.J.J. Winands, "Efficient Streamer Plasma Generation", Ph. D. Thesis, Eindhoven University of Technology, (2007)

.

7 Uitvoering van het onderzoek op NOx verwijdering

De uitvoering van het onderzoek naar verwijdering van NO_2 uit met dieseldamp verontreinigde lucht is opgedeeld in een aantal deelonderzoeken. Deze deelonderzoeken worden in de navolgende paragrafen kort beschreven en de resultaten daarvan worden aangegeven.
In hoofdzaak kan het onderzoek worden onderverdeeld in:

1- onderzoek aan een droge reactor die het basis verwijderingsconcept vormt en als referentie dient voor de opties die tot rendementsverbetering moeten leiden.(par. 7.1)
2- onderzoek aan optimalisaties in de vorm van
   - 2a vocht dosering (natte reactor) en waterfilm(par. 7.2 en 7.3))
   - 2b toeslagstoffen als NaOH en NH3 (par. 7.4 en 7.5)
   - 2c combinatie van vocht en toeslagstoffen (par. 7.6)

In par 7.7 t/m 7.8 wordt nader ingegaan op de vraag hoe met de waterfase in de reactor wordt omgegaan.
In par. 7.9 en 7.10 worden de resultaten van het onderzoek samengevat en besproken.
In par. 7.11 en 7.12 wordt ingegaan op het specifiek energiegebruik en de mogelijkheden om daarin nog verbeterslagen te maken.

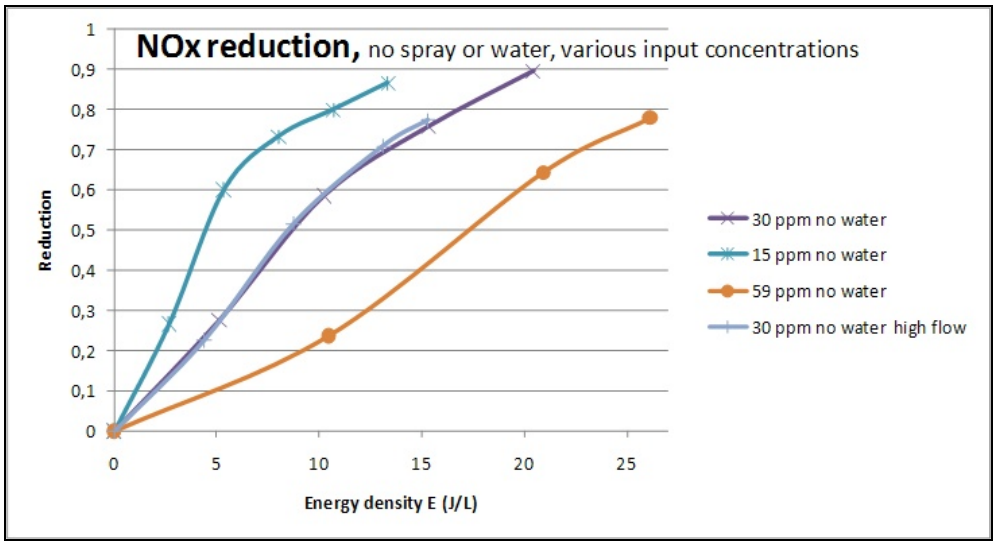
7.1 Verwijdering uit "droge" lucht = referentie verwijderingsniveau;

Bij de proeven met verwijdering van NO_2 uit droge lucht in een droge corona reactor, wordt uitgegaan van een vast debiet van 320 m^3/uur. Met de dieselgenerator in stationaire opstelling en verdunning van de afgassen van de dieselgenerator met verse lucht tot 320 m^3/uur wordt een ingangsconcentratie van ca. 30 ppm NO_x (ca. 56 mg NO_x/m^3) bereikt. Door de frequentie van de corona ontladingen te variëren wordt een variabele energie-intensiteit bereikt waarbij de effecten van de corona behandeling worden gemeten in de aflucht na de corona installatie.
Door het belasten van de dieselgenerator stijgt de emissie van NO_x. tot 59 ppm bij gelijkblijvend debiet van 320 m^3/uur. Tevens verandert de verhouding tussen NO en NO_2 in de uitlaatgassen. Dat is in figuur 7.4 ten opzichte van figuur 7.3 duidelijk af te lezen. Door juist de instroom van dieseluitlaatgassen wat te knijpen kan de concentratie NO_x worden teruggebracht tot 15 ppm. Op deze wijze kan het effect van concentratie en verblijftijd worden bepaald.

Verwijderingsrendementen

De verwijderingsrendementen die zijn gemeten bij de proeven worden uitgedrukt in een reductiepercentage, afgezet tegen de eenheid van ingebrachte energie per liter gas: Joule per liter lucht (J/l). Voor de verschillende beginconcentraties in ppm NO_x in de ingaande lucht kunnen dan lijnen worden gegenereerd die het reductiepercentage bij bepaalde energiedichtheid bij de gekozen beginconcentratie weergeven.

Uit figuur 7.1 is voorzichtig af te leiden dat een lagere concentratie een positief effect heeft op de verwijdering bij een bepaalde energiedichtheid in J/l.



Figuur 7.1 Samenvatting van de reductiepercentages van de NO_x metingen zonder toevoegingen

Energiedichtheid en energie-eficiency

In de figuren 7.2 t/m 7.5 zijn de resultaten van de proeven zonder toevoegingen per proef in detail weergegeven.
De blauwe punten gelden voor de afbraak van NO. Bij lage energiedichtheden breekt NO sneller af dan NO_2 (vierkante blokjes). Zodra NO helemaal is omgezet in NO_2 gaat de concentratie NO_2 weer dalen. In eerste instantie ontstaat er dus een stijging van de NO_2 concentratie door omzetting van NO in NO_2 De afbraak van NO_x (som van NO en NO_2) vertoont wel in alle gevallen een dalende lijn met toenemende energiedichtheid.

De zwarte lijnen geven de via lineaire regressie geïnterpoleerde energie-efficiency weer, uitgedrukt in ppm NO_x uitgezet als functie van het aantal J/l (ppm NO_x/(J/l)).
De lineaire regressielijn van NO_2 geeft slechts een deelaspect van de totale energie-efficiency voor NO_x-afbraak weer en is om die reden niet in het diagram opgenomen.

Effect van slip in de reactor

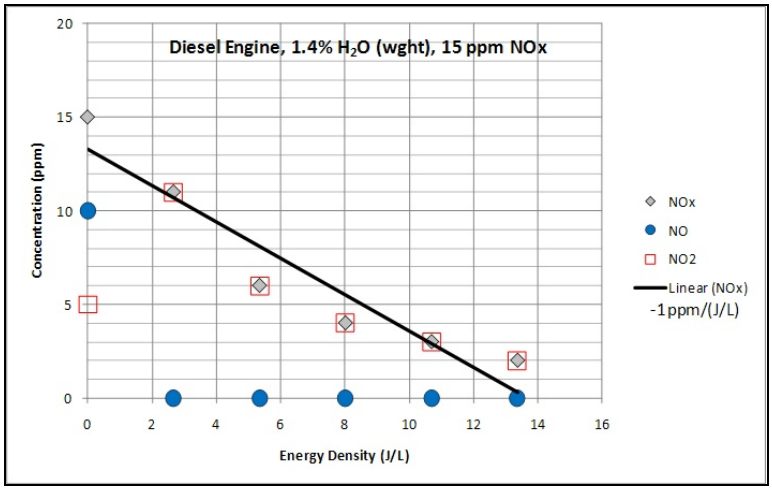
Volledige verwijdering van NO_x is bij de uitgevoerde proeven niet mogelijk geweest omdat er een permanente slip van lucht langs het opgewekte plasma plaatsvindt van naar schatting 10-15%. Deze slip wordt veroorzaakt door de boven en onder de elektrode racks aanwezige open ruimte in de reactor. Deze ruimte wordt geschat op 10-15% van het reactorvolume.
De slip zou beperkt kunnen blijven door aanwezige turbulentie waardoor de luchtdeeltjes toch in contact komen met het aanwezige koude plasma.
In figuur 7.2 loopt de NO_2 concentratie bij toenemende energiedichtheid naar een asymptoot op ca. 1 ppm. Dat duidt waarschijnlijk op de slip de door de reactor heen loopt. Er is dus bij toenemende energiedichtheid sprake van een situatie waarbij tot 100% NO_2 kan worden verwijderd.
Bij een volgend reactorontwerp voor een prototype zal aan dit aspect nog nader aandacht worden gegeven en zal de luchtstroom waarschijnlijk in de lengterichting van de elektroden gaan stromen in plaats van in de huidige loodrecht richting.

Bespreking van de energie-efficiency resultaten

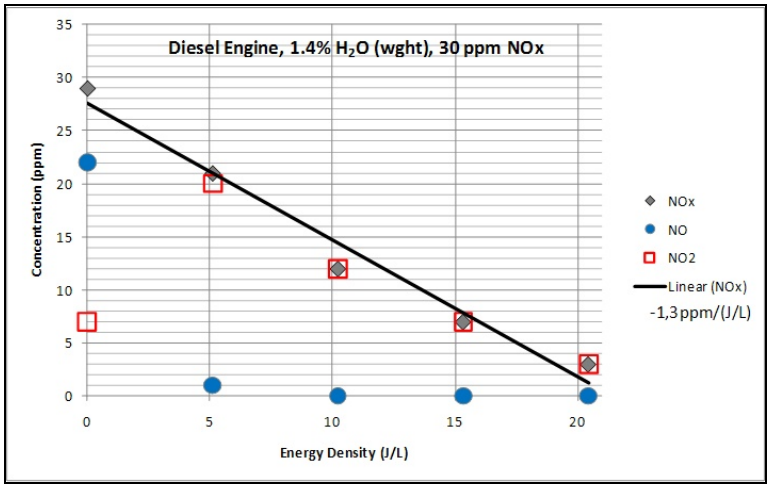
De energie-efficiency resultaten van de proeven met droge reactor worden besproken aan de hand van figuur 7.2 t/m 7.5.

- Bij de proeven met 30 ppm NO_x en 320 m^3/uur (figuur 7.3) blijkt het hoogste verwijderingsrendement te kunnen worden bereikt van ca. 90% bij 21 J/l energiedichtheid (afname van 29 naar 3 ppm NO_x). De energie-efficiency ligt daarbij op 1,3 ppm NO_x/(J/l).

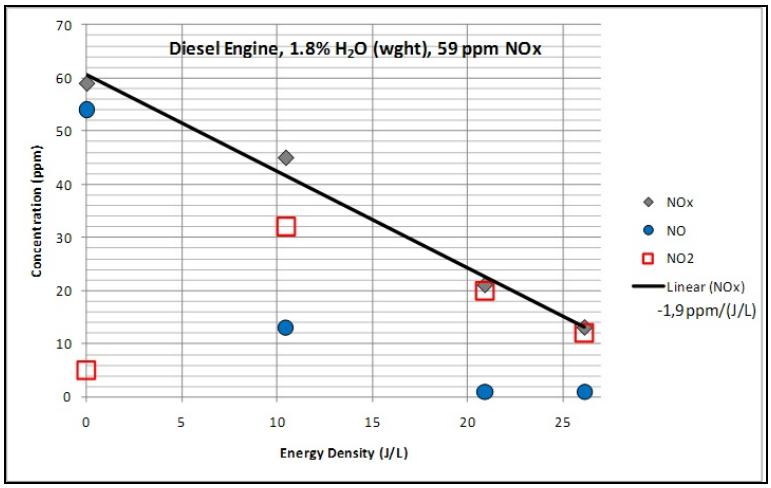
- De energie-efficiency blijkt bij een droge reactor met toenemende concentratie op te lopen van 1 ppm/(J/l) bij 15 ppm naar 1,9 ppm/(J/l) bij 59 ppm uitgangsconcentratie (vergelijk figuur 7.2, 7,3 en 7,4). In hoeverre dat ook bij een natte reactor (waterspray) het geval is, is niet verder onderzocht.
- Bij verhoogde flow blijkt de energie-efficiency eveneens licht toe te nemen (figuur 7.5 versus figuur 7.3).
- Niet duidelijk is of deze trends zich bij verdere verhoging van de flow of verlaging van de concentraties zullen doorzetten. Daarvoor is nader uitgebreid onderzoek nodig onder extremere omstandigheden van zowel flow als concentratie.



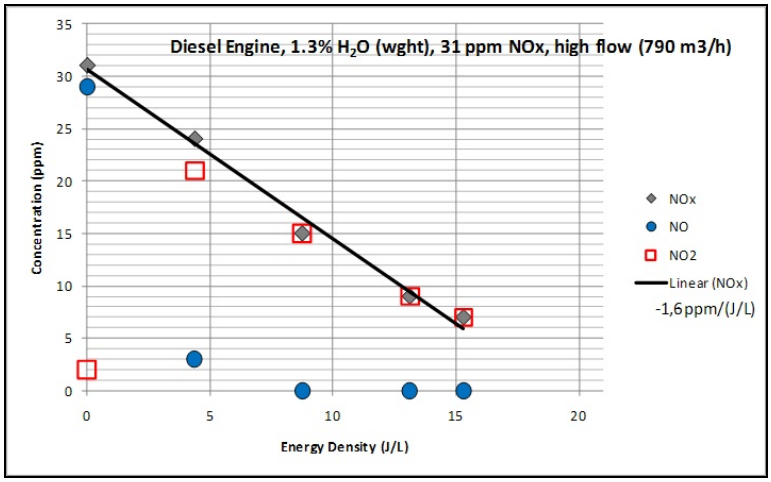
Figuur 7.2 Concentratieverloop vanaf 15 ppm NO_x bij 320 m^3/h bij toenemende energiedichtheid



Figuur 7.3 Concentratieverloop vanaf 30 ppm NO_x bij 320 m^3/h bij toenemende energiedichtheid



Figuur 7.4 Concentratieverloop vanaf 59 ppm NO_x bij 320 m^3/h bij toenemende energiedichtheid

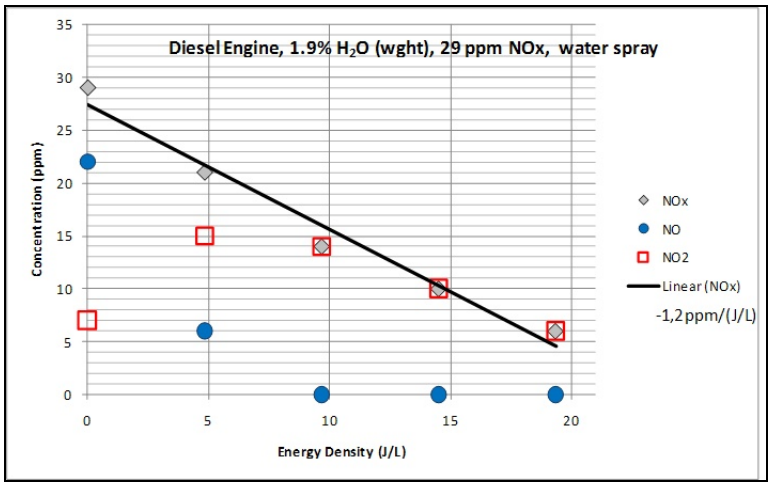


Figuur 7.5 Concentratieverloop vanaf 31 ppm NO_x bij verhoogd debiet van 790 m^3/h bij toenemende energiedichtheid

7.2 Verwijdering uit water(damp)verzadigde (natte) lucht via voorschakeling van waterdampdiffusoren en waterverneveling;

Proef met verneveling van 8 l water/uur
Bij de eerste proeven vindt waterverneveling plaats in een hoeveelheid van 2l/h per sproeier. In totaal zijn 4 sproeiers geïnstalleerd in de aanzuigleiding naar de reactor.
Verloop van de proef met verneveling:

- Start van experimenten met vernevelen van water in de luchtstroom t.b.v. NO_2 verwijdering. Diverse experimenten met flows van 300 tot 1000m^3/h, en 8 l/h water. T.g.v. het plasma / elektrische veld slaat een groot deel van het vernevelde water vrijwel direct neer op de aardplaten.
- Omzetten van NO naar NO_2 lukt met een energiedichtheid van 6 J/L bij een concentratie van 30 ppm NO.
- Omzetting van NO_2 naar HNO_3 is vergelijkbaar bij alleen vernevelen van water in de luchtstroom ten opzichte van droge behandeling.
- Bij een energiedichtheid van 20 J/l wordt 80 % NO_x verwijdering bereikt (de concentratie NO_x neemt af van 29 naar 6 ppm, zie fig 7.6).

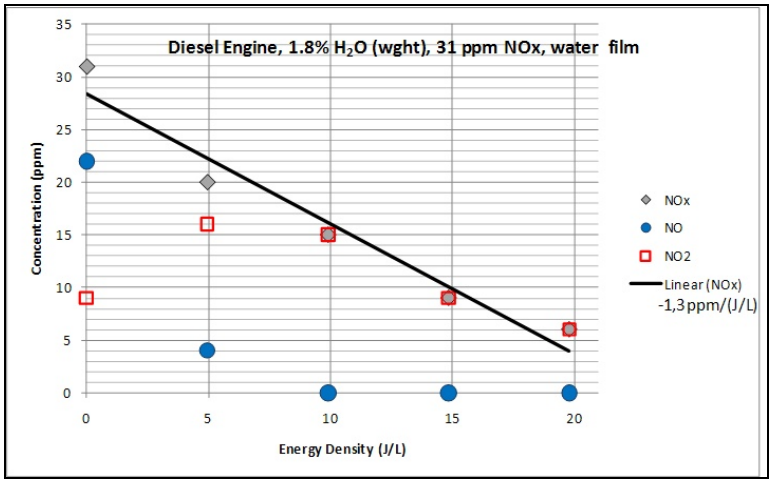


Figuur 7.6 NO_x verwijdering met water spray

7.3 Toepassing van een waterfilm op de aardplaten van de reactor

Voor het creëren van een waterfilm over de aardplaten wordt eerst een aanpassing aan de reactor gepleegd. Boven de kanalen waarin de koude plasma wordt opgewekt zijn waterleidingen met kleine sproeiopeningen aangebracht die een douche van waterdruppeltjes veroorzaken loodrecht op de aardplaten. Door voldoende druk op deze leidingen te zetten wordt een egale waterfilm op de aardplaten bereikt.
Resultaten (zie ook figuur 7.9):

- Het verwijderingspercentage bij een lage energiedichtheid van 5 J/l ligt met 35 % enigszins boven het niveau bij waterverneveling.
- Ten opzichte van droge verneveling is bij de waterfilm een lagere energiedichtheid nodig voor hetzelfde verwijderingspercentage (bij een droge reactor is 8 J/l nodig voor 35 % verwijdering).
- Bij hoger energiedichtheden ligt de efficiency om en nabij het niveau van verneveling en droge verwijdering.
- Bij een energiedichtheid van 20 J/l wordt 81 % NO_x verwijdering bereikt (afname van 31 naar 6 ppm NO_x).



Figuur 7.7 NO_x verwijdering met waterfilm op de aardplaten

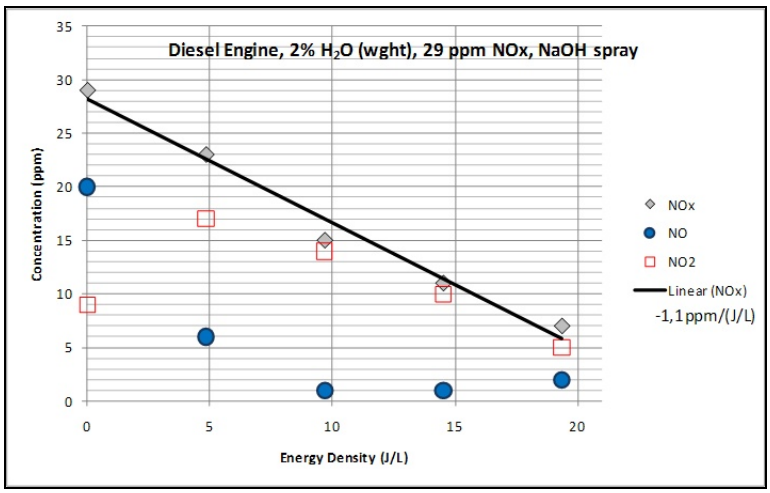
7.4 Toepassing van simultane NaOH injectie in natte lucht;

De verneveling van water via vernevelaars leidt tot de aanwezigheid van heel fijne waterdruppels in de ingangslucht naar de reactor. Door NaOH aan dit water toe te voegen

wordt de pH van de waterdruppels in de nevel in de reactor verhoogd tot 13,5. Hierdoor kan het evenwicht van de HNO_3-vorming in de reactor gunstig worden beïnvloed.

Resultaten (zie figuur 7.8 alsook figuur 7.10):

- Sproeien met een 0,625%-ige NaOH oplossing (8l/h) biedt gemiddeld iets slechtere verwijderingresultaten dan bij sproeien van alleen vocht bij dezelfde sproeidebieten en energie-intensiteiten. De verschillen zijn echter klein en moeilijk te meten bij de lage restconcentraties NO_x.
- De reden van deze niet verhoogde efficiency kan liggen in het feit dat de feitelijke afbraak optreedt in de gasfase en het evenwicht tussen NO_2 en HNO_3 daarom in de gasfase moet worden beïnvloed om effecten te kunnen zien. In de waterfase is alleen sprake van afvoer van reactieproducten. De loogdosering heeft waarschijnlijk geen invloed in de gasfase.
- Conclusie is dat toevoegen van loog aan het water van de waterfilm of aan de verneveling geen aanvullend gunstig effect heeft op de NO_2 verwijdering.



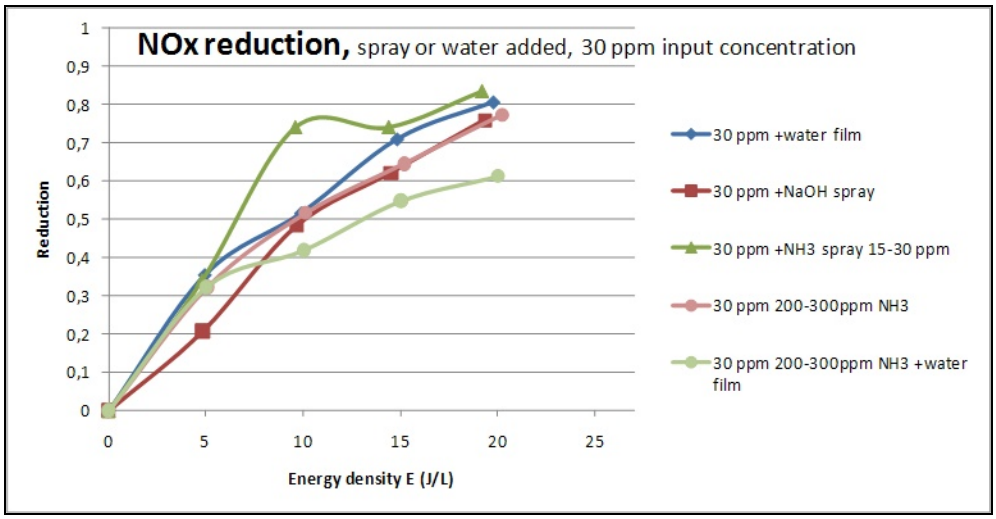
Figuur 7.8 NO_x verwijdering met NAOH spray

7.5 Toepassing van NH_3 injectie in (natte) lucht;

Ammoniak (NH_3) kan met NO_2 een reactie aangaan waarbij ammoniumnitraat (NH_4NO_3) wordt gevormd. Omdat ammoniumnitraat goed oplosbaar is in water zal in een vochtige omgeving het gevormde ammoniumnitraat via de waterfase kunnen worden afgevoerd uit de reactor. Deze toevoeging zou een versnelling van het verwijderingsproces van NO_2 kunnen betekenen en ook het verwijderingsrendement van NO_2 kunnen verhogen. Door de goede oplosbaarheid van ammoniumnitraat zal er, mits dit reactieproduct snel wordt afgevoerd, geen beperking zijn door de evenwichtsreacties die optreden.
Ammoniakmetingen met de beschikbare apparatuur worden ook gestoord door kruisgevoeligheid met O_3 . Daarom worden voor de ammoniak concentratiemetingen drägerbuisjes toegepast hoewel de aflezing van de drägerbuisjes wel een zekere mate van onnauwkeurigheid met zich meebrengt.

Metingen aan verneveling van een 25 %-ige ammoniak oplossing wijzen uit dat ammoniakconcentraties van 10-50 ppm gemakkelijk in de reactor bereikbaar zijn. Voor de proeven worden concentraties van ca. 30 ppm ammoniak gehanteerd welke stoichiometrisch overeenkomen met de ca. 30 ppm NO_x die als ingangsconcentratie wordt gebruikt.

1e Proef
NH_3 wordt als 2,5%-ige oplossing verneveld met ca. 30 ppm in het ingangskanaal naar de reactor in gelijke hoeveelheden met NO_x.



Figuur 7.10 Samenvatting van de resultaten bij aangepaste omstandigheden in de reactor

Aan de hand van figuur 7.10 kan worden vastgesteld dat ammoniak spray (15-30 ppm) een gunstig effect heeft, met name bij een lage energieintenstiteit van 10 J/l. Ook de waterfilm laat goede resultaten zien. Door combinatie van beide zou het effect maximaal kunnen zijn. De grafiek voor ammoniakspray kan echter op een meetfout berusten aangezien de vorm van deze grafiek niet voor de hand liggend is.
Desalniettemin blijken ammoniakspray en waterfilm beide de hoogste rendementen bij hogere energiedichtheden te genereren.

De proef is uitgevoerd met de natte waterfilm op de aardplaten in combinatie met dosering van 25%-ige ammoniakoplossing (15-30 ppm en 200-300 ppm).
Resultaten:

- De resultaten zijn vooralsnog vergelijkbaar met alleen NH_3 dosering of alleen waterfilmtoepassing.
- Een verdere optimalisatie van het verwijderingsrendement door combinatie van omstandigheden wordt enigermate gefrustreerd door de reactorconfiguratie. Het feit dat er sprake is van 10-15% slip van lucht boven en onderlangs de reactorplaten en elektroden, maakt dat er over het uiteindelijk te bereiken maximale rendement niet veel kan worden geconcludeerd.
- De gecombineerde proef met waterfilm en ammoniak spray (hoge concentratie) laat minder goede resultaten zien (figuur 7.10). Vermoed wordt dat deze veroorzaakt worden door te hoge ammoniak-concentraties waardoor de energie vooral in de oxidatie van ammoniak gaat zitten in plaats van in de afbraak van NO_x.

7.7 Naschakeling van een demister systeem voor afvang van de waterfase uit de lucht

Omdat de waterdruppeltjes fijn verdeeld zijn en direct tegen de aardplaten van de reactor aanslaan door het opgewekte elektrisch veld heeft naschakeling van een demister geen directe functie.
Waterdosering d.m.v. de lineaire douches tegen de reactoraardplaten leiden tot een egale waterfilm op de platen. Dit heeft niet tot gevolg dat er grote waterdruppels de reactor verlaten. Daarom is de demister niet ingezet voor het afvangen van waterdruppels.

7.8 Analyse van de verwijderde waterfase op HNO_3 aanwezigheid

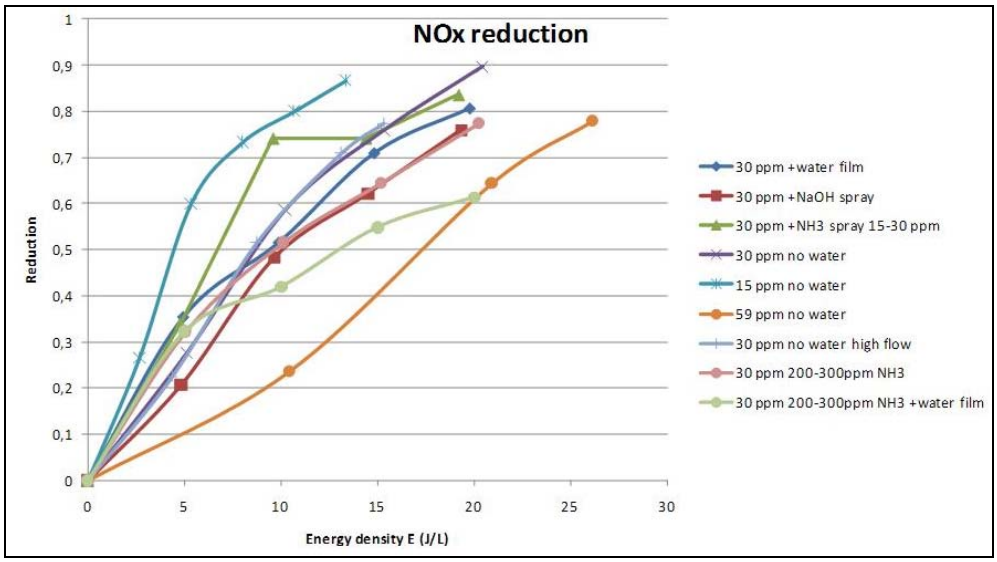
Bij het vernevelen van water tijdens NO_x afbraak is het lekwater gecontroleerd op pH. Daarbij is gebleken dat dit lekwater aanzienlijk zuur is, hetgeen duidt op aanwezigheid van salpeterzuur in het lekwater.

Tijdens de vervolgproeven met verneveling in combinatie met een waterfilm is gebruik gemaakt van een gesloten watercircuit. Vanuit een waterbassin van ca. 20 liter inhoud is de waterfilm op de platen in stand gehouden. Tevens is het vernevelde water in de ingaande lucht dat in de reactor is teruggehouden, opgevangen in dit bassin.

Bij regelmatige controle van het bassin op pH is gebleken dat er nu geen significante afwijkingen in pH zijn geconstateerd.
Gezien de geringe hoeveelheid verneveld water per tijdseenheid en de relatief korte periode van enkele uren die de reactor in gebruik is geweest, is het verklaarbaar dat er geen grote verschuivingen in de pH in het 20 liter bassin zijn waargenomen.
Pas bij langdurig gebruik van de reactor zullen verschuivingen in de waterkwaliteit van het gesloten watercircuit zichtbaar gemaakt kunnen worden.
Om bovenstaande redenen is besloten in het kader van dit onderzoek geen watermonsteranalyse te laten uitvoeren. Dit aspect vormt wel onderwerp van nader onderzoek in de toekomst.

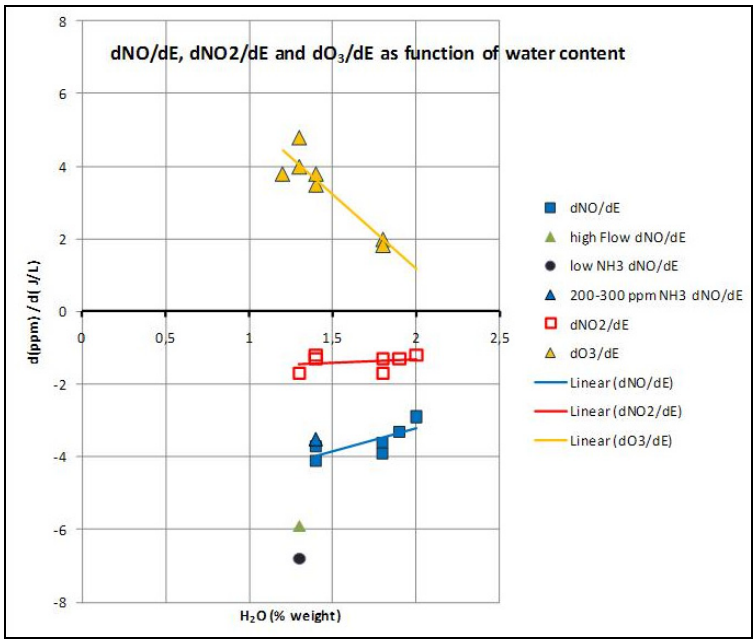
7.9 Samenvatting van de resultaten

In figuur 7.11 zijn alle meetresultaten van het onderzoek samengevat, uitgedrukt als % verwijdering bij bepaalde energiedichtheid (in J/l) in de reactor.



Figuur 7.11 Totaaloverzicht van bereikte rendementen op NO_x verwijdering

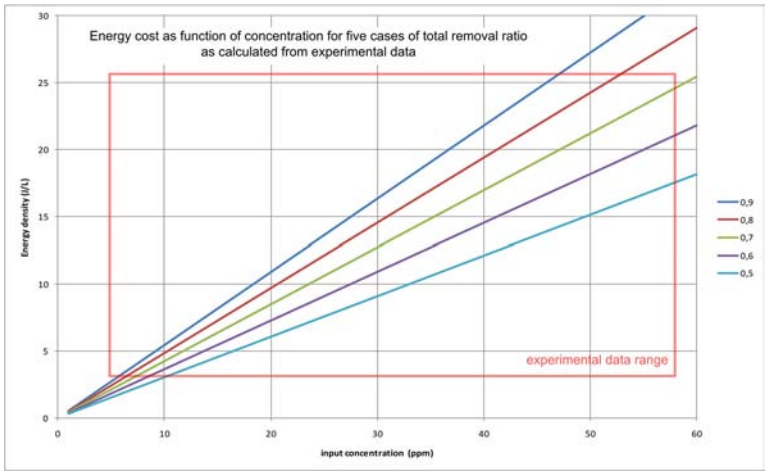
Door de verhouding tussen afbraak van NO/NO_2 ten opzichte van de energiedichtheid uit te zetten tegen de luchtvochtigheid ontstaat een beeld van de energie-efficiency die kan worden bereikt en de invloed van de waterfase in het afbraakproces. Dat wordt weergegeven in figuur 7.12.

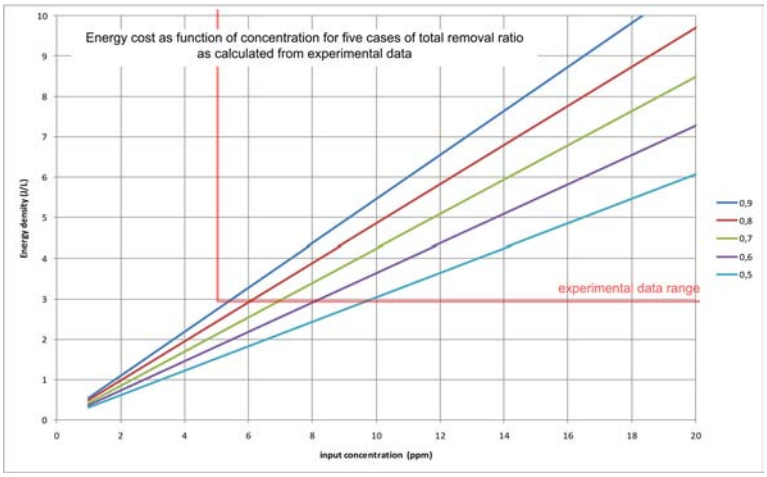


Figuur 7.12 Samenvattende resultaten uitgedrukt in energie-efficiency als functie van het watergehalte in de lucht

Uit figuur 7.12 blijkt dat de omzetting van NO_2 relatief onafhankelijk is van het watergehalte in de lucht (helling van de lijn) en gemiddeld op een niveau ligt van 1,3-1,4 ppm/(J/l). Dit blijkt ook wel uit de proeven waarbij de verschillen tussen droge reactor proeven en waterspray proeven erg klein zijn en de droge reactor eigenlijk iets beter scoort.
De omzetting bij lage NH_3 dosering blijkt met 1,5 ppm NO_x/(J/L) weer net iets beter dan bij een droge reactor (1,3 ppm NO_x /(J/l).
In vochtige lucht blijkt de energie-efficiency van de NO afbraak af te nemen van 4 naar 3 ppm/(J/l). Dit kan een gevolg zijn van een verminderde beschikbaarheid van O_3 bij toeenemende vochtigheid.
De productie van ozon neemt bij toenemend vochtgehalte af, vermoedelijk als gevolg van de productie van OH* radicalen waarin bij hogere energiedichtheden het merendeel van de energie gaat zitten.

Indien de energiedichtheid tegen de beginconcentratie van NO_x wordt uitgezet kan het NO_x reductie rendement worden vastgesteld. Er ontstaat dan een beeld als in figuur 7.13.





Figuur 7.13 Relatie tussen energiedichtheid en beginconcentratie NO_x bij rendementen van 50-90% NO_x verwijdering

De getoonde analyse in figuur 7.13 gaat uit van een constante helling dNO_x/dE van 1.65 ppm per (Joule/liter).
De helling in de gemeten data voor input concentraties tussen 15 ppm en 60 ppm wijkt niet meer dan 10 % af van deze waarde. De meetpunten onder de grens van 5 ppm zijn niet gebruikt voor de bepaling van de helling omdat hier verzadiging optreedt door de niet goed gefilterde ozon achtergrond en de slip in de reactor. Op grond van deze constante waarde H van de helling kunnen we de volgende relatie geven voor de energiekosten DeltaE als functie van de beginconcentratie Nin en de reductiefractie R:
DeltaE = R*Nin/H. Deze relatie is gebruikt om de getoonde grafieken in figuur 7.13 te tekenen.

In tabel 7.1 zijn tenslotte de gevonden waarden in energie-efficiency uit de figuren 7.2 t/m 7.9 samengevat.

Omstandigheden bij 320 m^3/uur	Beginconcentratie NO_x in ppm (mg/m^3)	H_2O in % (wght)	NO_x afname in ppm per (J/L)
Droog	15 (29)	1,4	1
Droog	30	1,4	1,3
Droog	59	1,8	1,9
Droog 790 m^3/h	31	1,3	1,6
Waterspray	29	1,9	1,2
Water film	31	1,8	1,3
NaOH spray	29	2,0	1,1
NH_3 spray low rate 15-30 ppm	33	1,3	1,5

Tabel 7.1 Samenvattend overzicht van energie-efficiency's onder verschillende omstandigheden.

7.10 Bespreking van de resultaten

De resultaten van de proeven laten zien dat NO_x in hoge mate verwijderd kan worden uit diesellucht.

De verwijdering wordt in hoofdzaak bepaald door de hoeveelheid energie die wordt toegepast. De verwijdering (uitgedrukt in totale hoeveelheid NO_x) verloopt lineair met het

energieniveau (uitgedrukt in totale hoeveelheid kWh) en is globaal onafhankelijk van de concentraties. Lagere concentraties kunnen bij lagere energiedichtheden in principe met hetzelfde rendement worden verwijderd als hogere concentraties bij hogere energiedichtheden. Er is echter één afwijkend meetresultaat bij NH_3 dosering die dit lineaire beeld niet helemaal volgt, (zie figuur 7.10; 30 ppm met NH_3 15-30 ppm dosering).Hier kan sprake zijn van een meetfout. Toekomstig onderzoek moet uitwijzen of dit significant is.
Afhankelijk hiervan dient te worden bezien of het wel of niet noodzakelijk is om voor verwijdering van NO_x met Corona techniek de tunnellucht te concentreren.

De energiedichtheid die is toegepast in de proeven bedraagt tussen 5 en 25 J/l.
Bij een energiedichtheid van 10 J/l wordt 80% van een 30 ppm NO_x concentratie afgevangen.
Voor het afbraakproces blijkt de luchtvochtigheid van de te behandelen lucht van invloed. Ook toevoeging van ammoniak blijkt een gunstige werking te hebben op de verwijdering van NO_x uit de diesellucht.

7.11 Specifiek energiegebruik en energiekosten

De energie-efficiency per verwijderde eenheid NO_x wordt uitgedrukt als ppm NO_x per J/l. Uit het onderzoek is gebleken dat bij de proeven sprake is van een energie-efficiency van 1,2 tot 1,9 ppm NO_x /(J/l). Als gemiddelde waarde is 1,65 ppm NO_x /(J/l) aangehouden (zie figuur 7.13 met analyse). Omdat de installatie nog suboptimaal is en de matching van de energiestromen kan worden verbeterd, mag worden verwacht dat de energie-efficiency minimaal kan worden verbeterd met een factor 2 naar ca. 3 ppm NO_x /(J/l). Met toepassing van een katalytisch oppervlak op de aardplaten is het zelfs denkbaar dat de efficiency met een factor tien kan worden verbeterd. Daarbij kan bijvoorbeeld gedacht worden aan titaandioxyde op de aardplaten. Deze hypothese is echter nog niet bewezen en voorlopig gaan we uit van conservatief aangenomen energie-efficiency van 1,4 ppm NO_x per J/l aan verwijderingsefficiency. 1,4 ppm NO_x komt overeen met ca. 2,6 mg NO_x/m^3.
Omgerekend naar energieverbruik levert een energie-efficiency van 1,4 ppm NO_x/(J/l) een verbruik in kWh op van 106 kWh/kg $NO_{x\ verwijderd}$ volgens onderstaande afleiding:

Berekening energiegebruik NOx verwijdering met Corona techniek		
1,4	ppm NO_x/ J/l	energie-efficiency
0,714	(J/l) /ppm NO_x	specifieke energiedichtheid
1,4	ppmNO_x/ kJ/m^3	
2,6	mg NO_x/m^3 / kJ/m^3	
2,6	mg NO_x/kJ	
2,6	g NO_x/MJ	
9,41	g NO_x/3,6 MJ	
9,41	g NO_x/kWh	
0,106	kWh/g NO_x verwijderd.	
106	kWh/kg NO_x verwijderd.	specifiek energiegebruik NO_x verwijdering in kWh

Energiekosten

Het gemeten specifiek energiegebruik betreft de huidige proefreactor. De bijbehorende energiekosten liggen rond € 12.--/kg NO_x (bij €0,11/kWh) Bij een verbetering van de energie-efficiency met een factor 2-2,5 komt het specifiek energiegebruik in de buurt van 40 kWh/kg $NO_{x\ verwijderd}$. Dat betekent een energiekosten niveau van ca. € 4,40/kg NO_x. Deze prijzen ligt weliswaar boven de (lage) handelsprijs voor NO_x emissierechten, maar

ligt wel in dezelfde orde van grootte. De NO_x prijs en de kosten van NO_x reducerende maatregelen ligt gemiddeld tussen €1 en €15 /kg NO_x. (bron Instituut voor toegepaste milieueconomie TME; NOX HANDEL, case studies (http://www.tme.nu/pdf/nox%20handel%20cases.pdf).)
In deze studie van TME wordt gesproken over een interne kostprijs van NO_x in ordegrootte € 5/kg. Daar worden de eventuele emissiebeperkende maartregelen tegen afgezet en wordt de terugverdientijd bepaald.
Ter vergelijking: "Het overschot op de markt heeft de prijs voor NOx laag gehouden: alle NOx-2005 rechten zijn voor minder dan 1 Euro/kilo verhandeld"(bron Emissiebeurs 20 dec. 2005).

7.12 Haalbare verbetering in energiekosten

De theoretische energiekosten kunnen geschat worden in termen van chemische activatie energie uitgedrukt in eV (1 eV = 1.6 10^{-19} J):
De onderliggende processen kosten idealiter zo'n 3,5 en 5,1 eV per event.
De reactiepaden zijn twee events lange ketens. De reactiepaden kosten theoretisch dus 8,6 eV. In een vergelijkbaar onderzoek aan ozon vorming vonden we resultaten die een factor van ca. 2 boven de theoretische waarde bleven. Dit was een kleinschalige, bijna ideale reactor/bron combinatie die perfect geoptimaliseerd was.
Vertaald naar de NO_x case zou dat dus een haalbare waarde van 17 eV per NO_x opleveren. We zitten nu op 150 eV, dat is 9 keer hoger dan deze haalbare waarde.
Enkele metingen in het verleden aan een kleine opstelling in het laboratorium (PhD thesis, TU/e, 1997 PPM Blom) gaven ook al indicatief aan dat de energiekosten minimaal ca. 60 eV per NO_x bedragen.
Op grond van deze beschouwingen moeten we dus makkelijk een verbetering kunnen halen van een factor 2,5.
De ingrediënten om dit te bereiken zijn: Kortere stijgtijd van de puls, een diffuser plasma en minder slip.

8 Onderzoek naar fijn stof verwijdering

8.1 Uitgevoerd stofonderzoek, gravitatieve stofmetingen

Door Buro Blauw is een tweevoudig stofonderzoek uitgevoerd , vóór en ná de Corona reactor.
Voor de resultaten en de wijze van uitvoering wordt verwezen naar de bijlage 1.

De belangrijkste conclusie is dat er een mechanisme optreedt in de reactor, dat ervoor zorgt dat er kennelijk meer fijn stof wordt geproduceerd dan er wordt afgebroken.
Op grond van een eerste visuele waarneming kan worden geconcludeerd dat er met het roet uit de diesellucht wel wat gebeurt: het filter na de reactor is grijskleurig en het filter voor de reactor is letterlijk roetzwart. Bij detailopnamen blijkt de roetdeken nagenoeg geheel verdwenen te zijn en is het structuuroppervlak van de glasvezelstoffilters volledig zichtbaar.

Bij de luchtdebiet metingen is enige onnauwkeurigheid ontstaan vanwege de geringe onderdruk die in de afzuigleidingen heerst. Daardoor en door enige valse luchtaanzuiging in het afzuigsysteem na de reactor heeft de debietmeting na de reactor tot een wat hoger luchtdebiet geleid dan de meting voor de reactor.

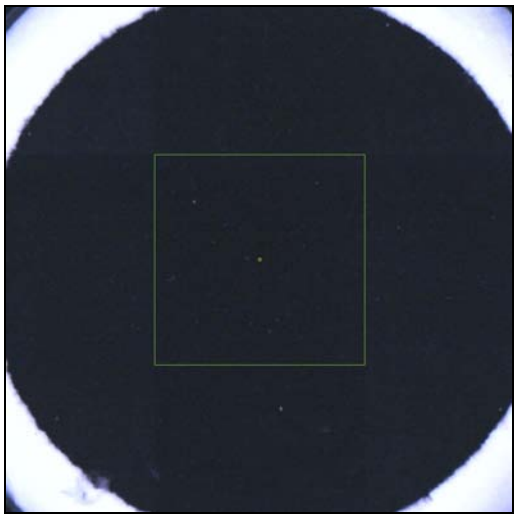
In de bijlage C bij het stofonderzoek van Buro Blauw in bijlage 1 wordt nader ingegaan op de meetnauwkeurigheid van de metingen. Hoewel de meetvlakbeoordelingen niet helemaal voldoen aan de standaard, kan toch worden gesproken over redelijk betrouwbare metingen en zeker over een goede indicatie van de mogelijkheden van roet-/stofverwijdering met Corona techniek.

8.2 Nader onderzoek naar de stofkarakteristiek van de stoffilters

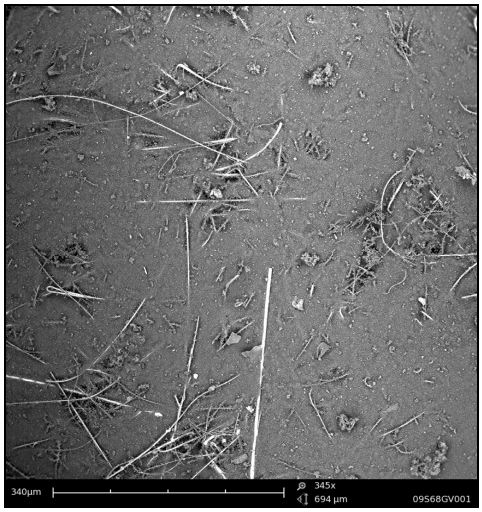
Op grond van de merkwaardige resultaten uit de stofmetingen is besloten de structuur van het stof op de filters voor en na de Corona reactor aan een nader microscopisch onderzoek te onderwerpen en alsnog een nadere stofkarakterisering uit te laten voeren door RPS analyse.

8.2.1 Opnamen met elektronenmicroscoop

Van één set filters uit de stofonderzoeken (ochtendmetingen, monster 001 en 006) van Buro Blauw zijn opnamen gemaakt met een elektronenmicroscoop. Deze worden hieronder weergegeven en kort besproken.

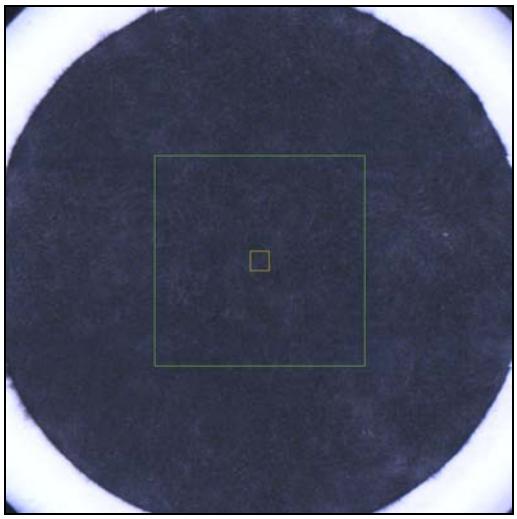


Figuur 8.1 Overzichtopname filter, diam. 2 cm

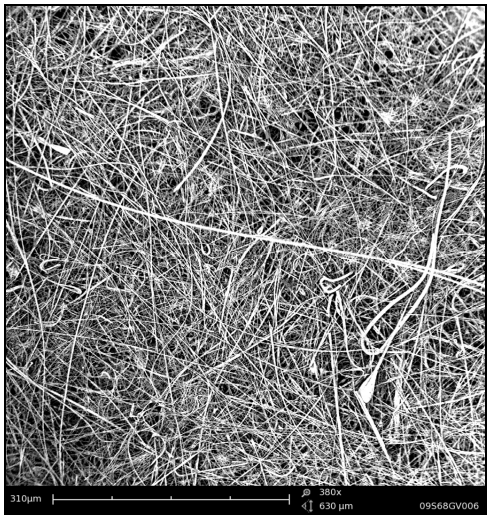


Figuur 8.2 354x vergroting

Figuren 8.1 en 8.2 Opname van de filters vóór de Corona reactor



Figuur 8.3 Overzichtopname filter, diam 2 cm



Figuur 8.4 380x vergroting

Figuren 8.3 en 8.4 Opname van de filters ná de Corona reactor

Uit de opnamen 8.1 en 8.3 blijkt duidelijk dat er minder roet op de filters ná de corona aanwezig is. Figuur 8.2 laat het oppervlak zien van het filter dat vóór de corona volledig is gevuld met deeltjes met hier en daar een vezel van het filtermateriaal. Figuur 8.4 toont een open filteroppervlak met nauwelijks stofdeeltjes.

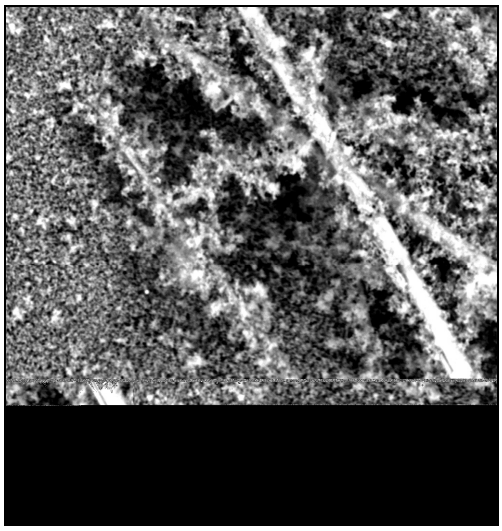
Verder inzoomen op de oppervlaktestructuur levert de volgende beelden op bij vergelijkbare vergroting:

Figuur 8.5 Vóór Corona; 1450x vergroting

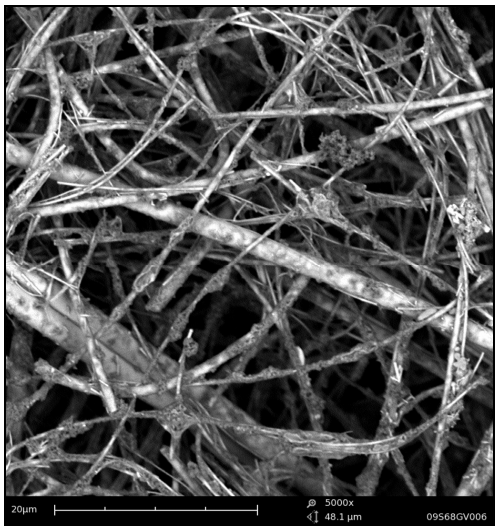
Figuur 8.6 Ná Corona; 1820x vergroting...

Figuur 8.5 en 8.6 geven duidelijk verschillende beelden van zowel het oppervlak als geheel alsook van de deeltjes die op de glasvezels van het filtermateriaal zichtbaar zijn.

De structuur van de deeltjes die worden afgevangen is ook verschillend, zoals uit de volgende sterk uitvergrote beelden blijkt:



Figuur 8.7 Vóór Corona; 5250x vergroting



Figuur 8.8 Ná Corona; 5000x vergroting...

Figuur 8.7 toont het filter vóór Corona dat volledig is beladen met roetdeeltjes. Het filter ná Corona in figuur 8.8 is aan het oppervlak nauwelijks beladen en hier is duidelijk de structuur van de glasvezels van het filter zichtbaar.

De toename van het gewicht van de filterplaatjes na de Corona is vooralsnog niet verklaarbaar.

8.2.2 Hypothese

Denkbaar is dat zoutkristallen veel dieper het filter binnendringen dan roetdeeltjes.

Dat zou verklaren waarom het filter voor de Corona volloopt met (grote) roetdeeltjes en na de Corona de (kleine) zoutkristallen (nitraten afkomstig van de omgezette NO_x) zich in het filter ophopen.

8.3 Stofkarakterisering door RPS analyse

Door het laboratorium van RPS Analyse is een kwantitatieve oppervlakte scan gemaakt van de twee stoffilters vóór en ná de Corona reactor. Zie ook bijlage 2.
Hierbij is op een drietal punten per filter met de oppervlakte scan een kwantitatieve bepaling uitgevoerd van de elementen die op dit stukje oppervlak voorkomen.

Met name is het element C koolstof van belang omdat dit een maat is voor de hoeveelheid roet dat op het filter is neergeslagen.
De volgende hoeveelheid C is in de metingen gevonden:
Voor het filter vóór de Corona, code 09S68GV002 is gevonden:
Massa in % 50.93%; 58,48%; 66,78%; gemiddeld ca. 58%.

Voor het filter ná de Corona, code 09S68GV007 is gevonden:
Massa in % 7,15%; 8,08%; 19,58%; gemiddeld ca. 11%.

Hoewel dit slechts oppervlaktescans betreft is het wel duidelijk dat er aanzienlijk minder koolstof voorkomt op het filter ná de Corona reactor dan op het filter vóór de reactor. Daarmee is nog niet verklaard waarom het filter ná de Corona reactor meer massa heeft afgevangen dan het filter vóór de reactor.

Er zijn 2 hypothesen denkbaar:
1 De roetdeeltjes ondergaan een sterke grootte-reductie in de koude plasma maar worden niet afgevangen in de reactor. Door de grootte-reductie kunnen de deeltje veel dieper in het stoffilter doordringen. Dit verklaart dan ook het grotere gewicht dat het filter ná de Corona reactor heeft gekregen. Immers op het filter vóór de reactor was sprake van een volledig dicht gelopen filteroppervlak, (zie foto' s in figuur 8.2 en 8.4).
2 Het roet is grotendeels verdwenen en het filter na de reactor bevat vooral nitraten en/of andere zouten in de vorm van kristallen (zouten zijn mogelijk resultaten van conversie door Corona plasma van NO_x in combinatie met restanten ammoniak of NaOH).

Om hier meer duidelijkheid over te krijgen zou het filter moeten worden gecrushed zodat de volledige massa in het filter beschikbaar komt voor verdere analyse. Met de gebruikte glasvezelstoffilters is de verwachting dat uit dit destructieve onderzoek geen significante gegevens naar voren komen omdat alle scan-resultaten door de grote hoeveelheden silicium uit de glasvezel worden gedomineerd.

RPS analyse gaat in bijlage 2 nog nader in op een mogelijke verklaring van de gevonden kristalachtige structuren op de glasvezels. Daarbij wordt gesuggereerd dat in het hete plasma Na_2O zou worden gevormd dat als Na-zout op de glasvezel kan neerslaan. Deze veronderstelling gaan uit van de aanwezigheid van heet plasma terwijl juist sprake is van koude plasmavorming in de reactor. Deze hypothese houdt dus geen stand.

RPS concludeert dat er sprake is van afzetting van Na -zouten met name Na carbonaat. Dat zou de gewichtstoename kunnen verklaren. Er zijn geen sporen van stikstof aangetroffen hetgeen erop duidt dat er ook geen sprake zou zijn van ammoniumnitraat afzettingen. Nader onderzoek op dit punt is van groot belang om de massabalans rondom de reactor vast te stellen.

9 Vertaalslag naar de praktijk

9.1 Situatie bij de tunnelmond

Bij een tunnelsituatie (5000 voertuigen/uur) is de uurproductie van NO_x en fijn stof berekend. Deze bedraagt 5.300 g NO_x /uur en 319 g PM_{10}/uur.) bron: Onderzoek naar tunnelventilatiesystemen; Oranjewoud; augustus 2009)
Op grond van deze totaal-emissie van een tunnel kan een eerste globale kostenberekening gemaakt worden wat betreft energiegebruik.

Per kg te verwijderen NO_x is een energiegebruik van 106 kWh berekend ofwel € 11,69/kg NO_x zoals uit tabel 9.1 blijkt.

Berekening energiekosten NOx verwijdering met Corona techniek		
1,4	ppm NO_x/ J/l	spec. energiegebruik in J/l
1,4	ppmNO_x/ kJ/m3	
2,6	mg NO_x/m3 / kJ/m3	
2,6	mg NO_x/kJ	
2,6	g NO_x/MJ	
9,41	g NO_x/3,6 MJ	
9,41	g NO_x/kWh	specifiek energiegebruik NOx verwijdering in kWh
106,29	kWh/kg	energiegebruik /kg NOx verwijderd
Energiekosten bij €0,11/kWh		
11,69	€/kg NO_x	energiekosten
Energiekosten emissiebestrijding bij tunnelmond		
5,3	kg NO_x/uur	emissie/uur
62	€/uur	kosten NO_x verwijdering /uur
5000	auto's/uur	verkeer door tunnel
0,012	€/autopassage	energiekosten per autopassage

Tabel 9.1 Afleiding energiekosten NO_x verwijdering aan de tunnelmond

Daarmee zou de verwijdering van NO_x uit de tunnellucht een kostenpost van 5,3 x € 11,69 = € 62/uur betekenen bij volledige NO_x verwijdering bij 5000 voertuigen per uur door de tunnel. De energiekosten per autopassage bedragen slechts 1,2 Eurocent/passage. Met een windmolen van 0,5-0,7 MW op locatie kan eenvoudig aan deze energiebehoefte worden voldaan en is de vergroening van de tunnelmond compleet.

9.2 Energetische aspecten in de praktijk

Indien we uitgaan van 90% reductie van NO_x tijdens de spits van 5000 voertuigen per uur (8 uren) en 80 % reductie voor de overige uren bij de helft van de verkeersbelasting dan zou dit een variabele kostenpost van ca. (8*0,9*62 € + 12*0,8*31 €)/dag = 744 €/dag opleveren.
Bij de verwachtte rendementsverbetering van een factor 2,5 worden de variabele kosten evenredig lager en komen op 300 €/dag.

Bij een debiet van 100.000 m^3/uur is de NO_x concentratie in de tunnel tijdens die spits gelijk aan:
(5.300.000 mg NO_x/100.000 m^3)/(1,91 mg/ppm) = 28 ppm. Na de coronareactor is dat bij 90% verwijdering 2,8 ppm (1,91 mg/ppm is de omrekeningsfactor bij 20degC).
Bij 300.000 m^3/uur wordt dat dus 9 ppm in de tunnel en 0,9 ppm bij de uitlaat na de reactor.
Bij de helft van de verkeersbelasting buiten de spits wordt dat bij 100.000 m^3/h respectievelijk 14 en 1,4 ppm en bij 300.000 m^3/uur 4,5 en 0,5 ppm.

Het hogere debiet is dus gunstiger: energiekosten van de corona-installatie blijven gelijk en de concentraties NO_x nemen af. De 300.000 m^3 te behandelen lucht komt globaal overeen met de hoeveelheden die uit tunnelventilatiestudie naar voren kwamen.

9.3 Investeringen

De benodigde investeringen voor een Corona filterinstallatie worden onderverdeeld in het elektrotechnisch gedeelte en het reactorgedeelte.

1 Bouw van de benodigde elektrotechniek voor gepulste corona opwekking

bruto vermogen	investering in €
10 Kw bruto	50.000 (= pilot)
Opschaling vanaf pilotniveau:	
30 kW bruto	80.000 = pilot met bijschakeling van een bias en 20 kW DC
Hogere vermogens zijn alleen op basis van nieuwe architectuur mogelijk:	
50 kW	100.000
100 kW	180.000

2 Ontwerp en bouw van een optimale reactor

reactorinhoud	luchtdebiet	investering in €
1 m3	5.000 m^3/uur	20.000 (=pilot)
Opschaling vanaf pilotniveau met een nieuw draadreactor ontwerp:		
5 m3	25.000 m^3/uur	50.000
10 m3	60.000 m^3./uur	85.000

Voor een situatie waarbij 300.000 m^3 bij 18 mg/m^3 NO_x (9 ppm) in piek belasting moet worden behandeld zou een vermogen van 0,9*106*5,3 kW = 505 kW nodig zijn. Dit is te realiseren met 5 units van 100 kW elk.

Daarbij zou een indicatieve investering van € 900.000 nodig zijn voor de bron en € 425.000 voor de reactor. Samen ca. € 1.325.000,--

Bij de verwachtte rendementsverbetering van een factor 2,5 wordt dit evenredig goedkoper, dus totaal € 530.000,--

9.4 Exploitatiekosten

Bij een investering van € 530.000,-- voor een Corona systeem worden de jaarlijkse exploitatiekosten in hoofdzaak bepaald door:

- rente en afschrijving (stel afschr. 10 jr +rente: 16%), € 84.800
- onderhoud/vervanging(stel 3% v.d. invest.) € 15.900
- energiekosten (€ 300/dag; 365 d/jr)_. € 109.500

Totaal € 210.200

Uit deze indicatieve berekening blijkt dat de energiekosten een substantieel onderdeel van de totale exploitatiekosten uitmaken.

9.5 Reactorgrootte

Naar verwachting kan het reactorontwerp zodanig worden ontwikkeld dat een niet-geconcentreerde luchtstroom direct uit de tunnelmond met een debiet van ca. 300.000 m^3/uur probleemloos door de reactor kan worden gevoerd. Met een vermogen van 200 kW kan dan een hoeveelheid van ca. 5 kg NO_x per uur worden verwijderd. Daarmee is op de piek van de verkeersdrukte een reductie van ca. 90% NO_x te bereiken.

In deze verwachting is uitgegaan van een optimaler reactormodel in de vorm van een draad-plaatreactor waarin diffuser plasma bereikt wordt en daarmee een efficiënter systeem. Ook op theoretische gronden kan verwacht worden dat het energiegebruik nog met een factor 2,5 af zal nemen.

Bij 300.000 m^3/uur ofwel 83 m^3/sec kan de reactorinhoud bij een verblijftijd van 0,6 sec. beperkt blijven tot ca. 50 m^3.

Vanwege de wens om ook PM_{10} te verwijderen zal de reactor mogelijk vergroot moeten worden zodanig dat de verblijftijd groter wordt. De eventuele noodzaak hiervan moet door nader onderzoek bepaald worden. Hierbij gelden de volgende ontwerpfactoren:

Voor de verwijdering van stof met een elektrisch veld gelden globaal de volgende regels:

1. Oplaadtijd
   Oplaadtijd voor stof is grootte orde 10 milliseconde. Veilige bovengrens is 100 ms.
2. Migratie tijd
   10 - 20 seconde in een droge reactor, 0,5 - 5 seconde in een natte reactor.
3. Reactie tijd
   Veel korter dan oplaadtijd.

Dus wat betreft stof zou een verblijftijd van 0,5 tot 5 sec haalbaar kunnen zijn. Voor een eventueel uit te voeren met een tweede reactordeel ,nat bedreven, met alleen migratie gaan we voorlopig uit van een extra verblijftijd van 2 seconde. Daarvoor is alleen DC hoogspanning nodig en significant minder vermogen dan voor de Corona reactor zelf.

Voor de additionele fijn stof verwijdering zal dan eventueel nog een extra investering in reactorruimte van ca. 2*83 = 166 m^3 moeten plaatsvinden. Een ruimte van 4x4x10 meter vergt een aanzienlijk ruimtebeslag maar zal qua kosten in ordegroottte € 100.000 kunnen liggen. Een eenvoudig DC hoogspanningssysteem vergt nog een extra investering van ordegrootte ca. € 30.000 zodat de additionele investeringskosten voor fijn stof verwijdering simultaan met NO_x afvang ca. € 130.000 bedragen.
Voor de exploitatie van het stofafvang gedeelte zouden nog een exploitatiepost van ca. € 30.000/jr nodig zijn onder aanname dat de als gevaarlijk afval (roet, lood, additieven, C_xHy, teer) af te voeren stofafvoer uit het afvangsysteem nog eens € 5.000/jr vergt.

9.6 Ruimtebeslag

Uit de berekeningen in par. 9.4 blijkt dat het ruimtebeslag voor NO_x-reductie relatief klein is met een reactorgrootte van 50 m^3. Voor stofafvang is een groter volume van 166 m^3 nodig.
Dit systeem kan bij bestaande tunnels alleen boven de tunnelmond worden gebouwd. Bij nieuw te bouwen tunnels is en extra kelderconstructie onder de tunnelmond vaak een kostbare operatie omdat de tunnelmond vaak al sterk verdiept is aangelegd en daar dan nog 6 meter dieper moet worden ontgraven. Ook bij nieuwe tunnels zou een luchtbehandelinggebouw boven op de tunnelmond uit kostenoverwegingen de voorkeur genieten.

10 Conclusies

- NO wordt in de proefreactor volledig verwijderd door Corona techniek.
- NO_2 verwijdering in "droge" lucht zonder toevoeging van water, blijkt stabiele resultaten te geven bij verschillende (hoge) concentraties NO_2 in de ingangslucht. 15-60 ppm NO_2 wordt in de proefreactor voor 80-90% verwijderd mits de energie-intensiteit in J/l op ca. 20-30 J/l wordt gehandhaafd.
- Door alleen toevoeging van waterdamp of een waterfilm op de aardplaten stijgt het verwijderingsrendement in geringe mate.
- Door combinatie van ammoniak en een waterfilm stijgt het rendement met ca. 5 % punt t.o.v. een "droog" bedreven reactor.
- Onder optimale omstandigheden is een verwijdering van 80% bij 30 ppm NO_x haalbaar met een energiedichtheid van 15 J/l. Dit komt overeen met ca. 1,65 ppm/(J/L)
- Verlaging van de NO_x concentratie in de lucht geeft een verlaging van de benodigde energiedichtheid voor vergelijkbare verwijderingspercentages.
- NO_2 afbraak is naast de energiedichtheid van een aantal factoren afhankelijk zoals vochtgehalte en temperatuur.
- Gemiddeld over alle metingen ligt de energie-efficiency van de NO_x verwijdering op een niveau van ca. 1,4 ppm NO_x/(J/l). Qua energiekosten komt dit neer op een bedrag van € 11,60/kg $NOx_{verwijderd}$.
- Op grond van een analyse van de mechanismen en de haalbare verbeteringen ten opzichte van de proefopstelling verwachten we een reductie van de benodigde energie met minstens een factor 2,5.
- Uitgaande van de metingen en een haalbare verbetering met een factor 2,5 bereken we voor een installatie die 5 kg NO_x per uur kan verwijderen bij een luchtdebiet van ca. 300.000 m^3/h is een indicatief investeringsniveau ca. € 530.000,--.
- Voor deze installatie worden de jaarlijkse energiekosten geraamd op ca. € 110.000,--
- Het simultaan verwijderen van stof is nog niet onomstotelijk aangetoond. Er blijkt wel sprake te zijn van een vrijwel volledige verwijdering van de roetdeeltjes maar tegelijk neemt het gewicht van stof op de stoffilters toe. Een hypothese is de vorming van zoutkristallen diep in het filter en tegelijk een vergaande verwijdering van de roetdeeltjes.

Aanbevelingen

- Het mechanisme van verwijdering van NO_x uit (diesel)lucht is nog niet volledig begrepen. Nader onderzoek op dit punt, met name de vorming van HNO_3 is noodzakelijk om de processen volledig te doorgronden.
- De diagnostiek kent nog problemen in verband met de kruisgevoeligheid van de gebruikte apparatuur voor ozon. Met een geoptimaliseerde diagnostiek zal een duidelijker beeld van afbraak van NO_x en energetisch rendement kunnen worden verkregen.
- De afbraak van NO_x bij concentraties van 1 ppm of lager dient nog nader te worden onderzocht. Daarvoor is ook verfijnder detectieapparatuur noodzakelijk.
- De reactorconfiguratie dient te worden geoptimaliseerd om slip van onbehandelde luchtstromen te vermijden en om een beter diffuus koud plasma te maken en daarmee en hogere energie-efficiency te bereiken.

- Verder pilotonderzoek op een praktijklocatie naar de simultane stof (roet) verwijdering en naar een gesloten massabalans over de reactor moet leiden tot meer inzicht in de productie van zouten en de wijze waarop deze uit de luchtstroom kunnen worden verwijderd, bijvoorbeeld door een demister achter de reactor te plaatsen.

Bijlage 1 Stofonderzoek door Buro Blauw

STOFONDERZOEK AAN DE CORONA BIJ DE TU IN EINDHOVEN

Meetrapport van 31 augustus 2009

BL2009.4756.01.V02 van 14 oktober 2009

Rapporttitel	STOFONDERZOEK AAN DE CORONA BIJ DE TU IN EINDHOVEN
Subtitel	Meetrapport van 31 augustus 2009

Buro Blauw B.V.
Nude 54
6702 DN Wageningen
Tel: 0317-425200
Fax: 0317-426111
E-mail: info@buroblauw.nl
Internet: www.buroblauw.nl

Opdrachtgever	Oranjewoud B.V. Postbus 8590 3009 AN Rotterdam
Rapportnummer	BL2009.4756.01.V02
Datum	14 oktober 2009
Bestandsnaam	BL2009.4756.01.V02

INHOUDSOPGAVE

1. INLEIDING 4

2. OMSCHRIJVING VAN DE SITUATIE 5
2.1 Inrichting 5

3. OPZET ONDERZOEK 6
3.1 Meetplan 6
3.2 Meetmethoden 6

4. MEETRESULTATEN 7
4.1 Inleiding 7
4.2 Beoordeling meetpositie 7
4.4 Debiet 8
4.5 Stofconcentratie 9

5. CONCLUSIE 10

Colofon 11

BIJLAGEN 12
A. Verklarende woordenlijst 13
B. Meetmethode debiet 14
C. Meetmethode totaalstof 15
D. Gedetailleerde meetgegevens 17
E. Stofcertificaat 21

1. INLEIDING

Buro Blauw heeft in opdracht van Oranjewoud B.V. een stof onderzoek uitgevoerd aan de Corona installatie op de locatie van de TU Eindhoven.

Het doel van het onderzoek is het bepalen van het stofverwijderingsrendement van de Corona installatie bij verschillende procesinstellingen.

De stofmetingen zijn uitgevoerd op maandag 31 augustus 2009.

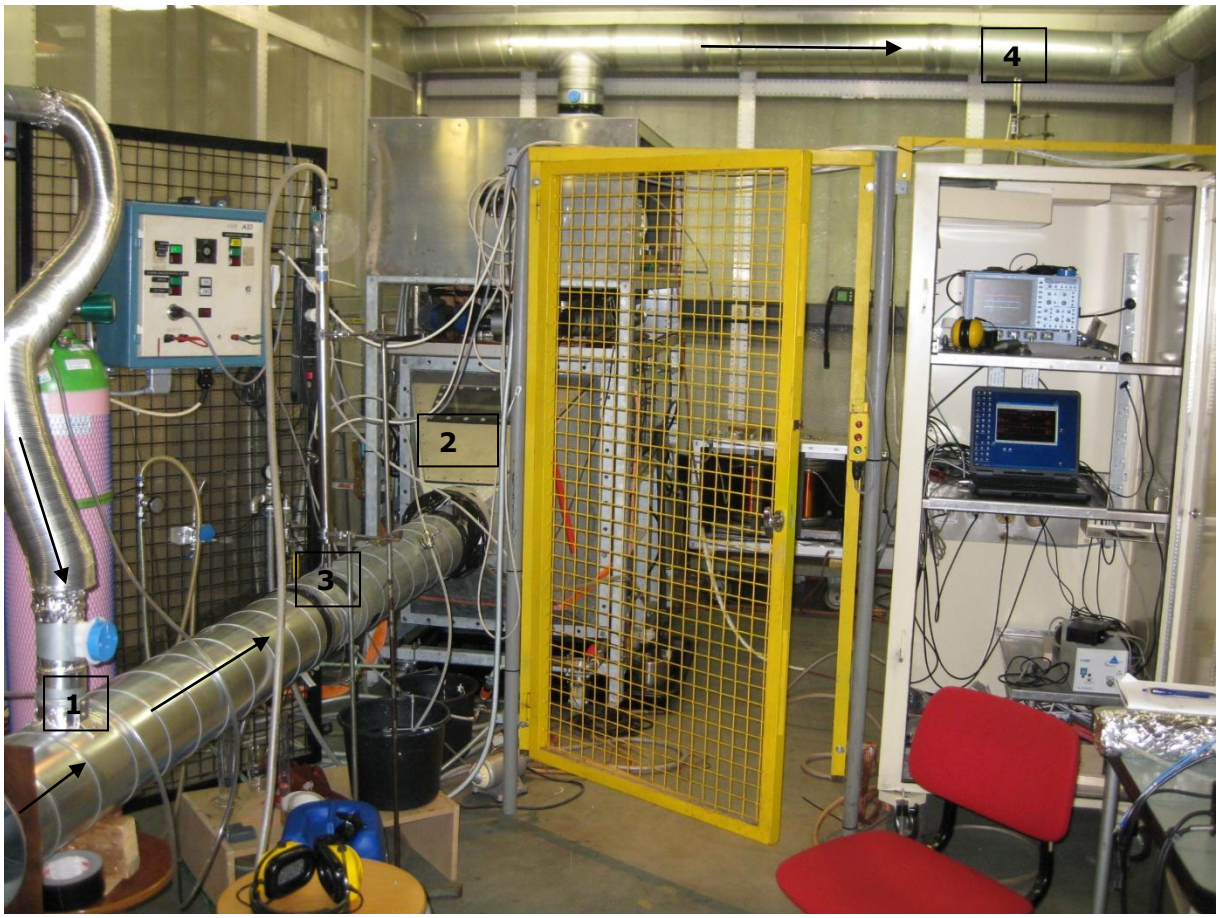
In dit rapport worden de onderzoeksresultaten gepresenteerd. In hoofdstuk 2 wordt een omschrijving van de situatie gegeven. In hoofdstuk 3 wordt de opzet van het onderzoek beschreven en worden de meetmethoden beschreven. In hoofdstuk 4 worden de meetresultaten gepresenteerd. In hoofdstuk 5 tenslotte worden de conclusies van het onderzoek geformuleerd. In de bijlagen wordt gedetailleerde informatie gegeven.

2. OMSCHRIJVING VAN DE SITUATIE

2.1 Inrichting

De locatie waar de Corona installatie staat ligt aan de Den Dolech 2 te Eindhoven.

De ingaande luchtstroom voor de Corona installatie wordt bijgemengd met uitlaatgassen afkomstig uit een diesel aggregaat. De uitlaatgassen worden samen met de bijgemengde schone lucht door de Corona installatie geleid. Via een leiding worden de afgassen naar de buitenlucht geëmitteerd. Figuur 2.1 geeft een overzicht van de meetlocatie.



1. Bijmenging afgassen diesel aggregaat
2. Corona installatie
3. Meetpunt voor Corona installatie
4. Meetpunt na Corona installatie

Figuur 2.1 locatieoverzicht Corona installatie

In de Corona installatie vinden electrische ontladingen plaats. De energie die daarbij vrij komt zorgt voor een fysische reiniging van de doorstromende lucht.

3. OPZET ONDERZOEK

3.1 Meetplan

Het onderzoek bestond uit het simultaan meten van de stofconcentratie voor en na de Corona installatie teneinde het stofverwijderingsrendement te bepalen. Dit is bij 2 verschillende procesinstellingen uitgevoerd. Tabel 3.1 geeft een overzicht van de procesinstellingen.

Tabel 3.1 Instellingen Corona installatie

Procesinstelling	Aantal pulsen p/sec	Energie per puls (Joule)	Waterfilm	Kleine sproeier (%)
1	150	4,4	Aan	50
2	400	4,4	Uit	100

3.2 Meetmethoden

De Raad voor Accreditatie heeft Buro Blauw B.V. met ingang van 28 juli 2004 de accreditatie verleend voor de uitvoering van verschillende verrichtingen door de meetdienst conform NEN-EN-ISO/IEC 17025 (nl) (2000), *Algemene eisen voor de competentie van beproevings- en kalibratielaboratoria*. Buro Blauw staat geregistreerd onder nummer L400. De geaccrediteerde verrichtingen hebben enkel betrekking op de uitvoering van metingen en de analyse ervan. De interpretatie van de meetgegevens en de daaruit voortvloeiende conclusies en aanbevelingen vormen geen onderdeel van de accreditatie. Tabel 3.2 geeft een overzicht van de toegepaste meetmethoden in dit onderzoek.

Buro Blauw B.V. is lid van de Vereniging Kwaliteit Lucht. Deze vereniging zet zich in voor een permanente ontwikkeling en borging van een goede kwaliteit van luchtmetingen en bestaat uit vooraanstaande meet- en inspectie-instanties in Nederland. Een toelichting op de diverse meetmethoden staat in de bijlagen vermeld.

Tabel 3.2 Meetmethoden

Bepaling	Verrichting	Norm	Accreditatie[1]	Bijlage
Afgaskarakteristieken	Afgassnelheid, temperatuur, druk, vochtgehalte en debiet	ISO 10780	Q	B
Totaalstof	Isokinetische monsterneming op een vlakfilter	NEN-EN 13284-1	Q	C
Analyse totaalstof	Gravimetrische bepaling gehalte totaalstof	NEN-EN 13284-1	Q	C

[1]: De met Q gemerkte verrichtingen zijn geaccrediteerd door de Raad voor Accreditatie

4. MEETRESULTATEN

4.1 Inleiding

De stofmetingen zijn uitgevoerd op maandag 31 augustus 2009. Tabel 4.1 geeft een overzicht van de tijdsindeling van de verschillende deelmetingen. Voorafgaand aan elke deelmeting is een debietmeting uitgevoerd.

Tabel 4.1 Tijdsindeling van de uitgevoerde stofmetingen

Bronnr.	Omschrijving	Datum	Start [uur]	Eind [uur]	Monstercode
1A	Voor Corona procesinstelling 1	31-08-09	11:21	12:22	09S68GV001
2A	Na Corona procesinstelling 1		11:21	12:22	09S68GV006
1A	Voor Corona procesinstelling 2	31-08-09	14:20	15:20	09S68GV002
2B	Na Corona procesinstelling 2		14:20	15:20	09S68GV007

Tijdens de metingen hebben er geen storingen in het zowel het proces als de stofmetingen plaatsgevonden. De monsternameduur per deelmeting bedroeg ca. 1 uur.

4.2 Beoordeling meetpositie

Om na te gaan of het meetvlak voldoet aan de randvoorwaarden die in NEN-EN 13284-1 voor stofmetingen worden gesteld, zijn voorafgaand aan de metingen temperatuur- en luchtsnelheidsmetingen uitgevoerd. Criteria voor ongestoorde profielen staat in tabel 4.2.

Tabel 4.2 Criteria meetvlakbeoordeling debietmetingen

Parameter	Criterium
Oppervlakte meetvlak	≥ 0,07 m^2
Gassnelheid	> 5 m/s
Richting gasstroom van kanaal	< 15° ten opzichte van de lengteas
Verdeling gassnelheid	$V_{max} : V_{min}$ < 3:1
Richting	Geen “negatieve” luchtsnelheden

De meetresultaten van de beoordeling van het meetvlak staan in bijlage D. Tabel 4.3 geeft een samenvatting van de beoordeling van de meetvlakken.

Tabel 4.3 Samenvatting beoordeling meetvlak

Nr.	Bronomschrijving	Beoordeling meetvlak	Meetvlak geschikt
1	Voor Corona installatie	Voldoet niet aan alle randvoorwaarden norm	Ja, mits rekening gehouden met hogere meetonzekerheid
2	Na Corona installatie	Voldoet niet aan alle randvoorwaarden norm	Ja, mits rekening gehouden met hogere meetonzekerheid

Debietmetingen worden conform ISO 10780 uitgevoerd. Deze norm is van toepassing op gekanaliseerde meetvlakken met een oppervlakte vanf 0,07 m^2
De meetonzekerheid voor de uitvoering van debietmetingen conform ISO 10780 bedraagt minder dan 5% indien aan alle randvoorwaarden in de norm wordt voldaan. In de praktijk wordt een hogere meetonzekerheid gehanteerd van maximaal 20%.

4.4 Debiet

De waarden van de debietmetingen zijn in tabel 4.4 weergegeven. In de tabel worden afgeronde waarden gegeven. De berekeningen zijn met niet afgeronde waarden uitgevoerd. De gedetailleerde meetgegevens staan in bijlage D.

Tabel 4.4 Resultaten van de debietmetingen

Kanaal	Nr.	Opp.[1]	Temp. [^oC]	Vocht [g/m_o^3]	Druk[2] [kPa]	Snelheid [m/s]	Debiet[3] [m^3/u]	Debiet[5] [m_o^3/u]
Voor Corona	1.A	0,03	23,0	15	1014,9	2,6	290	260
	1.B	0,03	32,0	12	1013,0	3,4	390	340
Na Corona	2.A	0,05	21,8	15	1013,2	2,2	390	360
	2.B	0,05	25,0	16	1011,1	2,6	460	410

[1]: Het gemeten oppervlak in het meetvlak
[2]: Sommatie van absolute druk en statische druk
[3]: Onder bedrijfsomstandigheden
[4]: Onder normaalomstandigheden (273k, 101,3 kPa, droog)

4.5 Stofconcentratie

In tabel 4.5 staan per deelmeting de resultaten van de totale massa in mg, het monstervolume in m_o^3 en de concentratie in mg/m_o^3 vermeld. De gedetailleerde meetgegevens staan in bijlage D. Het certificaat van de stofweging staat in bijlage E vermeld.

Tabel 4.5 Resultaten totaalstof concentratiemetingen (categorie S)

Nr.	Omschrijving	Identificatie	Massa [mg]	Volume [m_o^3]	Concentratie [mg/m_o^3]
1A	Voor Corona	09S68GV001	0,83	0,852	1,0
1B		09S68GV002	1,00	1,188	0,8
2A	Na Corona	09S68GV006	1,73	0,783	2,2
2B		09S68GV007	1,86	0,946	2,0

Uit tabel 4.5 blijkt dat de Corona installatie een negatief stofverwijderingsrendement heeft. Een plausibele verklaring voor de toename van totaalstof na de Corona installatie is op basis van de beschikbare gegevens niet te geven. De filters van de metingen zijn aan de opdrachtgever overgedragen. Opdrachtgever laat de filters verder onderzoeken.

5. CONCLUSIE

Het stofonderzoek aan de Corona installatie is op maandag 31 augustus 2009 uitgevoerd. Tijdens de uitvoering van de metingen hebben zich geen storingen of problemen voorgedaan. De volgende conclusies kunnen uit het onderzoek geformuleerd worden.

1. Het stofverwijderingsrendement van de Corona installatie is niet aangetoond.

2. Een aanwijsbare reden voor de toename van stofconcentratie na de Corona installatie is op basis van de huidige gegevens niet te geven.

3. De stoffilters zijn aan de opdrachtgever overhandigd ten behoeve van nadere analyse op de filters.

Colofon

Rapportnaam	:Stofonderzoek aan de Corona installatie in Eindhoven :Meetrapport 31 augustus 2009
Rapportnummer	:BL2009.4756.01.V02
Datum	14 oktober 2009
Opdrachtgever	:Oranjewoud
Contactpersoon	:Bob Smulders
Auteur	:Erik Verhaaf
Uitvoerders	:Erik Verhaaf; Jan Willem Winters
Datum	:14-10-2009
Paraaf auteur	: i.o.
Naam controleur	:Ir. Mark Kosters
Paraaf controleur	:

De huidige versie vervangt de eventueel eerder uitgebrachte versie in zijn geheel.

BIJLAGEN

A. Verklarende woordenlijst

1. Afzonderlijke meting:
   Incidentele meting ter controle van de emissie en bestaande uit ten minste drie onafhankelijke monsternemingen (deelmetingen);
2. Debiet:
   Afgashoeveelheid die per tijdseenheid wordt geëmitteerd;
3. Meetmethode:
   Het geheel van monsterneming, monsterbehandeling en analyse ten behoeve van de kwantificering van emissies;
4. Meetonnauwkeurigheid:
   De onder vastgelegde, constante afgascondities en inherent aan de meetmethode te verwachten maximale spreiding, zoals opgegeven in de toe te passen norm- of meetvoorschriften;
5. Normaal kubieke meter:
   Een normaal kubieke meter is het volume van droge lucht met een temperatuur van 273 K en een druk van 101,3 kPa;
6. Pitotbuis:
   Meetinstrument om luchtsnelheden in afvoerkanalen te meten;
7. Relatieve vochtigheid:
   Het gehalte aan waterdamp in lucht, gerelateerd aan het maximale gehalte aan waterdamp (verzadigingsdampspanning), die lucht bij 101,3 kPa en de betreffende temperatuur kan bevatten;
8. Standaard kubieke meter:
   Een normaal kubieke meter is het volume van vochtige lucht met een temperatuur van 293 K en een druk van 101,3 kPa;

B. Meetmethode debiet

De debietmetingen van de geforceerde emissies zijn uitgevoerd zoals beschreven in de norm ISO 10780 (1994), *Stationary source emissions –Measurement of velocity and volume flowrate of gas streams in ducts.* De luchtsnelheid is met een radanenometer of pitotbuis gemeten, de temperatuur met een K-type voeler, het drukverschil met een druksonde, vocht met een capacitieve sensor of met de natte bol/droge bol methode en de druk met een precisie barometer. Tabel B.1 geeft een overzicht van de toegepaste debietmeetapparatuur.

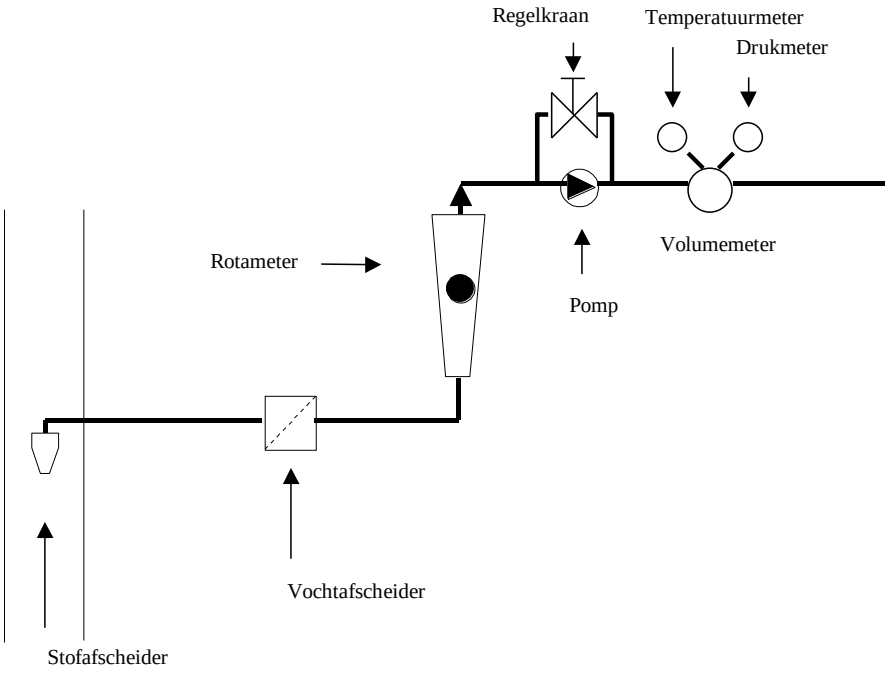
Tabel B.1. Meetapparatuur voor de metingen van het afgasdebiet

Grootheid	Dimensie	Apparatuur	Merk	Meetbereik	Nauwkeurigheid
Luchtsnelheid	hPa	Pitotbuis	Testo 400	0-10 hPa	± 0,03 hPa
Relatieve	%	Capacitieve sensor	Testo 400	0…100% RV	± 2% RV (2…98% RV)
vochtigheid	g/m^3	K-type thermokoppels	Tempcontrol	-40…260 ^oC	± 1,1 ^oC
Temperatuur	^oC	K-type thermokoppel	Tempcontrol	-40…260 ^oC	± 1,1 ^oC
Drukverschil	hPa	Druksonde	Testo 400	± 100 hPa	± 0,1 hPa (0…20 hPa)
Druk	hPa	Precisie barometer	Eijkelkamp 97225	908…1062 hPa	± 0,8 hPa

De meetonzekerheid onder ideale omstandigheden bedraagt minder dan 5%. In de praktijk is een meetonzekerheid van 10% - 20% meer realistisch

C. Meetmethode totaalstof

Totaalstof metingen zijn uitgevoerd zoals beschreven in de norm NEN-EN 13284-1 (2001) '*Emissie van stationaire bronnen – Bepaling van massaconcentratie van stof in lage concentraties – Deel 1: Manuele gravimetrische methode*'. De monstername is uitgevoerd met behulp van een pompkast waarmee een deelstroom van de lucht over een filter in het afgaskanaal is geleid. De luchtstroom is isokinetisch aangezogen. De pompkast is van eigen fabrikaat en is voorafgaand aan de metingen in het laboratorium van Buro Blauw gekalibreerd. De onzekerheid van de meetmethode bedraagt 20% indien aan alle randvoorwaarden in de norm wordt voldaan. Figuur C.1 geeft een schematische weergave van de meetopstelling.



Figuur C.1. Schematisch overzicht van de meetopstelling

De monstername van het stof heeft plaatsgevonden op een geconditioneerd vlakfilter met een diameter van 5 cm. Conditionering vond plaats in de weegkamer van Buro Blauw. Na afloop van de metingen zijn de filters inclusief blanco filters teruggeplaatst in de weegkamer. De stofmassa is gravimetrisch bepaald met behulp van een analytische balans van het merk SARTORIUS, type RC210D. Tabel C.2 geeft een overzicht van de specificaties van de analytische balans.

C. Vervolg meetmethode totaalstof

Tabel C.2 Specificaties van de gebruikte analytische balans

Omschrijving	Dimensie	Specificatie
Model	-	RC 210 D
Structuur weegbereik	-	DualRange
Weegbereik	g	52/210
Afleesbaarheid	mg	0,01/0,1
Tareerbereik	g	-210
Reproduceerbaarheid (standaardafwijking)	mg	≤ ± 0,02/0,1
Lineariteitsafwijking	mg	≤ ± 0,03/0,2
Lineariteitsafwijking (tot 5 g)	mg	≤ ± 0,02
Meettijd	s	≤ 10

D. Gedetailleerde meetgegevens

Algemeen	
Datum meting	31-08-2009
Bronnummer	1
Bronomschrijving	Voor Corona installatie

Meetpositie		
Locatie	[-]	In Corona gebouw TU Eindhoven
Oriëntatie meetvlak	[-]	Verticaal

Meetvlakbeoordeling				
Omschrijving	Norm	Meting 1 (1A)	Meting 2 (1B)	Meting 3
Hoek gassnelheid (tot kanaalas)	≤ 15°	<15	<15	
Oppervlak meetvlak	0,07 m^2	0,0314	0,0314	
Geen negatieve gasstroom	> 0 m/s	Allen > 0	Allen > 0	
Drukverschil pitotbuis	> 5 Pa	4	7	
V_{max}:V_{min}	< 3 : 1	nvt	nvt	
Voldoet		Nee	Nee	

Debiet				
Omschrijving	Eenheid	Meting 1 (1A)	Meting 2 (1B)	Meting 3
Tijdstip	[uu:mm]	11:21	14:20	
Kanaalvorm	[-]	Rond	Rond	
Diameter	[m]	0,2	0,2	
Oppervlak	[m^2]	0,0314	0,0314	
Temperatuur	[°C]	23,0	32,0	
Statische druk	[Pa]	-2	3	
Absolute druk	[hPa]	1015,0	1013,0	
Vochtgehalte	[g/m_o^3]	15,1	12,4	
Luchtsnelheid	[m/s]	2,6	3,4	
Debiet	[m^3/uur]	289	389	
Debiet	[m_0^3/uur]	262	343	

D. Vervolg gedetailleerde meetgegevens

Stof				
Omschrijving	Eenheid	Meting 1 (1A)	Meting 2 (1B)	Meting 3
Starttijd	[uu:mm]	11:21	14:20	
Eindtijd	[uu:mm]	12:22	15:20	
Monstercode	[-]	09S68GV001	09S68GV002	
Middellijn mondstuk	[mm]	11,5	11,5	
Beginstand gasmeter	[m^3]	7,7051	8,6284	
Eindstand gasmeter	[m^3]	8,6284	9,9250	
Gemiddelde gasmetertemp.	[^oC]	27,9	30,3	
Correctiefactor gasmeter	[-]	1,0182	1,0182	
Doorgezogen volume	[m^3]	0,8522	1,1884	
Isokinetische controle	[-]	Goed	Goed	
Filtermassa	[mg]	0,83	1,00	
Stofconcentratie	[mg/m_o^3]	1,0	0,8	
Stofemissie	[g/uur]	n.a.	n.a.	
Veldblanco 09S68GV003	[mg]	0,06		

Algemeen	
Datum meting	31-08-2009
Bronnummer	2
Bronomschrijving	Na Corona installatie

Meetpositie		
Locatie	[-]	In Corona gebouw TU Eindhoven
Oriëntatie meetvlak	[-]	Verticaal

Meetvlakbeoordeling				
Omschrijving	Norm	Meting 1 (2A)	Meting 2 (2B)	Meting 3
Hoek gassnelheid (tot kanaalas)	≤ 15º	<15	<15	
Oppervlak meetvlak	0,07 m^2	0,0491	0,0491	
Geen negatieve gasstroom	> 0 m/s	Allen > 0	Allen > 0	
Drukverschil pitotbuis	> 5 Pa	3	4	
V_{max}:V_{min}	< 3 : 1	nvt	nvt	
Voldoet		Nee	Nee	

Debiet				
Omschrijving	Eenheid	Meting 1	Meting 2	Meting 3
Tijdstip	[uu:mm]	11:21	14:20	
Kanaalvorm	[-]	Rond	Rond	
Diameter	[m]	0,25	0,25	
Oppervlak	[m^2]	0,0491	0,0491	
Temperatuur	[^oC]	21,8	25,0	
Statische druk	[Pa]	-176	-196	
Absolute druk	[hPa]	1015,0	1013,0	
Vochtgehalte	[g/m_o^3]	15,1	16,3	
Luchtsnelheid	[m/s]	2,2	2,6	
Debiet	[m^3/uur]	392	455	
Debiet	[m_0^3/uur]	356	407	

D. Vervolg gedetailleerde meetgegevens

Stof				
Omschrijving	Eenheid	Meting 1	Meting 2	Meting 3
Starttijd	[uu:mm]	11:21	14:20	
Eindtijd	[uu:mm]	12:22	15:20	
Monstercode	[-]	09S68GV006	09S68GV007	
Middellijn mondstuk	[mm]	11,5	11,5	
Beginstand gasmeter	[m^3]	38,4835	39,3530	
Eindstand gasmeter	[m^3]	39,3529	40,4200	
Gemiddelde gasmetertemp.	[^oC]	28,7	32,9	
Correctiefactor gasmeter	[-]	0,9951	0,9951	
Doorgezogen volume	[m^3]	0,7827	0,9464	
Isokinetische controle	[-]	Goed	Goed	
Filtermassa	[mg]	1,73	1,86	
Stofconcentratie	[mg/m_o^3]	2,2	2,0	
Stofemissie	[g/uur]	1	1	
Veldblanco 09S68GV003	[mg]	0,06		

E. Stofcertificaat

blauw
luchthygiëne
onderzoek en advies

TESTING
RvA L 400
d voor Accreditatie

Analyse certificaat

blad 1 van 2

certificaatnummer : 2009G-068
projectnummer : 4756

Aanvrager:	Buro Blauw Afdeling Meetdienst Nude 54 6702 DV Wageningen
Onderzocht:	5 stofmonsters aangeleverd op filtermateriaal
Identificatie:	De bemonsterde filters zijn aan het laboratorium aangeboden in uniek gecodeerde petrieschaaltjes.
Methodiek & meetcondities:	De gravimetrische analyse is uitgevoerd conform hoofdstuk 7 van de NEN-EN 13284-1 in een geconditioneerde weegkamer.
Datum ontvangst monsters:	31 augustus 2009
Datum analyse monsters:	4 september 2009
Mate van (on)zekerheid:	Nauwkeurigheid: 5% Ondergrens: 0,02 mg
Plaats van uitgifte:	Wageningen
Datum van uitgifte:	4 september 2009

S.M. Moorhoff
Laborant Luchtonderzoek

Reproductie van het volledige certificaat is toegestaan. Gedeelten van het certificaat mogen slechts worden gereproduceerd na verkregen schriftelijke toestemming.

Buro Blauw B.V. is niet aansprakelijk voor schade die voortvloeit uit de toepassing of het gebruik van het resultaat van de analyses.

Buro Blauw B.V. Nude 54A, 6702 DN Wageningen
Telefoon: (0317) 425200, Telefax: (0317) 426111, E-mail: info@buroblauw.nl
Postbank nr.: 4004002, K.v.K. 09064003 Arnhem, BTW-nummer NL91.91.033.B01

E. Vervolg stofcertificaat

blad 2 van 2

certificaatnummer : 2009G-068

Resultaat

Monsteridentificatie code	Massa [mg]
09S68GV001	0,77
09S68GV002	0,95
09S68GV003	<0,02
09S68GV006	1,67
09S68GV007	1,80

Paraaf opsteller:

Buro Blauw B.V. Nude 54A, 6702 DN Wageningen
Telefoon: (0317) 425200, Telefax: (0317) 426111, E-mail: info@buroblauw.nl
Postbank nr.: 4004002, K.v.K. 09064003 Arnhem, BTW-nummer NL91.91.033.B01

Bijlage 2 Kwantitatieve oppervlaktescans stoffilters van RPS Analyse

Analyse Certificaat

RPS Analyse B.V.
E analyse@rpsgroep.nl
W www.rpsgroep.nl
Bank HBU 62 23 48 175
KvK 20059540
Ulvenhout
Tolweg 11
PO Box 3440, 4800 DK
Breda
T 031(0)76 - 587 99 10
F 031(0)76 - 587 98 80
Hoogeveen
Zeppelinstraat 9
PO Box 2030, 7900 BA
T 031(0)528 - 22 90 10
F 031(0)528 - 22 90 18

Rapportagedatum	:	23 september 2009
RPS Analyse projectnummer	:	0909-0610
RPS Analyse monsternummer	:	09-035333
Opdrachtgever	:	Oranjewoud B.V.
Adres	:	Rivium Westlaan 72
Postcode en plaats	:	2909 LD Capelle a/d IJssel
Land	:	
Projectnummer opdrachtgever	:	-
Lokatie monstername	:	-
Datum monstername	:	-
Monstergegevens afkomstig van	:	Oranjewoud B.V.
Monsternummer opdrachtgever	:	09S68GV002
Lokatie monster	:	Voor reactor
Opmerking(en)	:	-
Soort monster / medium	:	25 mm glasvezel
Volume lucht (l)	:	-

Analyseresultaat

Het monster is onderzocht m.b.v. electronenmicroscopie met rontgen micro analyse (SEM-EDX).

Op het filter is een hoge concentratie koolstof waargenomen. In de elementen analyse is ook veel silicium en wat natrium, calcium, magnesium en aluminium maar deze elementen zijn afkomstig van de onderliggende glasvezel matrix.
De aanwezigheid van goud komt door de monstervoorbehandeling waarbij een dunne goudlaag op het preparaat wordt gedampt.

Zie ook de bijlagen 09-035333 (3 stuks).

Opmerkingen:
--

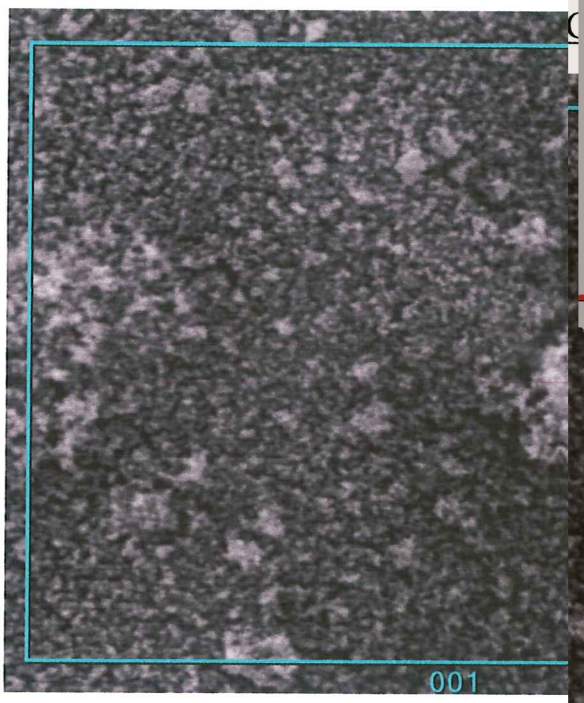
Dit onderzoek had plaats met als doel de aanwezigheid van bovenstaande componenten aan te tonen.
Alleen aan het originele complete Analyse Certificaat kunnen rechten worden ontleend.
Dit rapport mag uitsluitend in zijn geheel worden gereproduceerd.
De resultaten hebben uitsluitend betrekking op het aangeboden monster
* Deze analyseresultaten zijn berekend op basis van (evt. door opdrachtgever) opgegeven meettijd en volume.
< = het analyseresultaat is kleiner dan de rapportagegrens van de betreffende analysemethode.
De analyses gemerkt met een "Q" zijn geaccrediteerd door RvA Testen, registratie onder nummer L192
Onder M.O. wordt verstaan de meetonzekerheid, k=2 (excl. monstername)

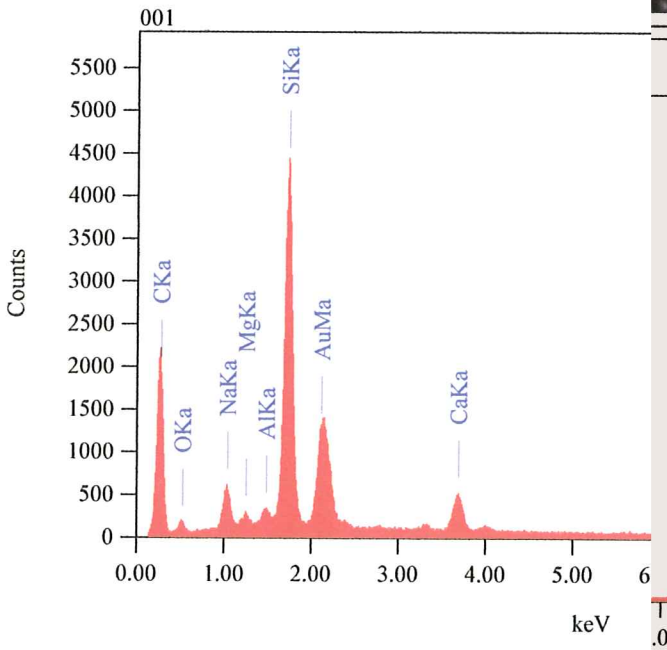
Operationeel Manager

J.Kegelaer

RPS

09-03533





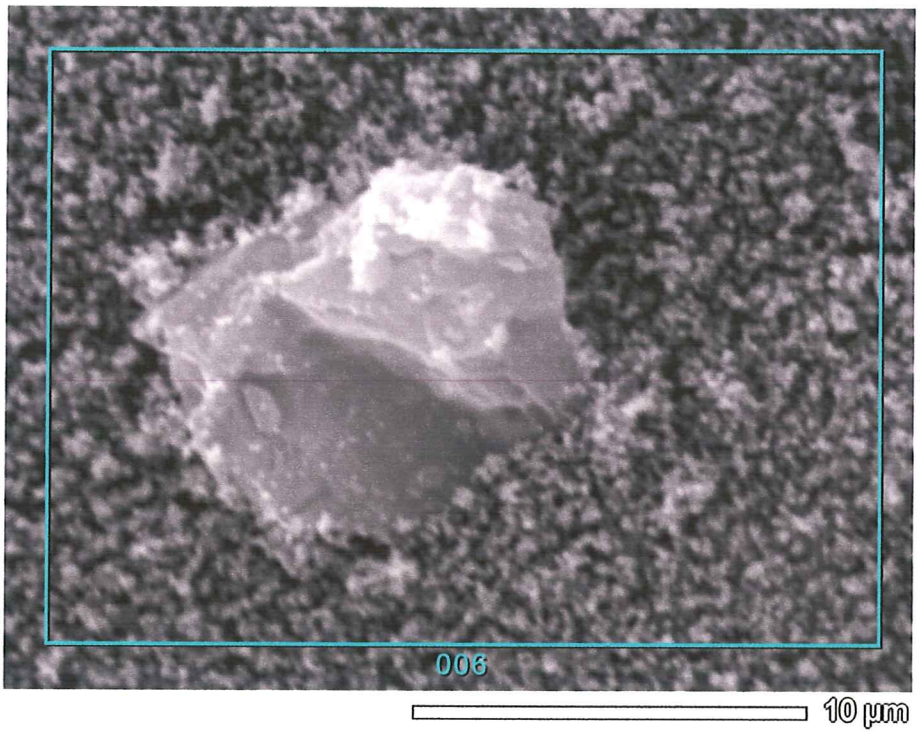
ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxi
Fitting Coefficient : 0.3336
Total Oxide : 24.0

Element	(keV)	Mass%	Error%	Mol%	Com
C K*	0.277	50.93	0.15	88.03	C
O		17.30			
Na K*	1.041	2.17	0.19	0.98	Na2
Mg K	1.253	0.50	0.19	0.42	MgC
Al K*	1.486	0.71	0.20	0.27	Al2
Si K	1.739	11.31	0.22	8.36	SiC
Ca K*	3.690	2.22	0.23	1.15	CaC
Au M	2.121	14.86	0.46	0.78	Au2
Total		100.00		100.00	

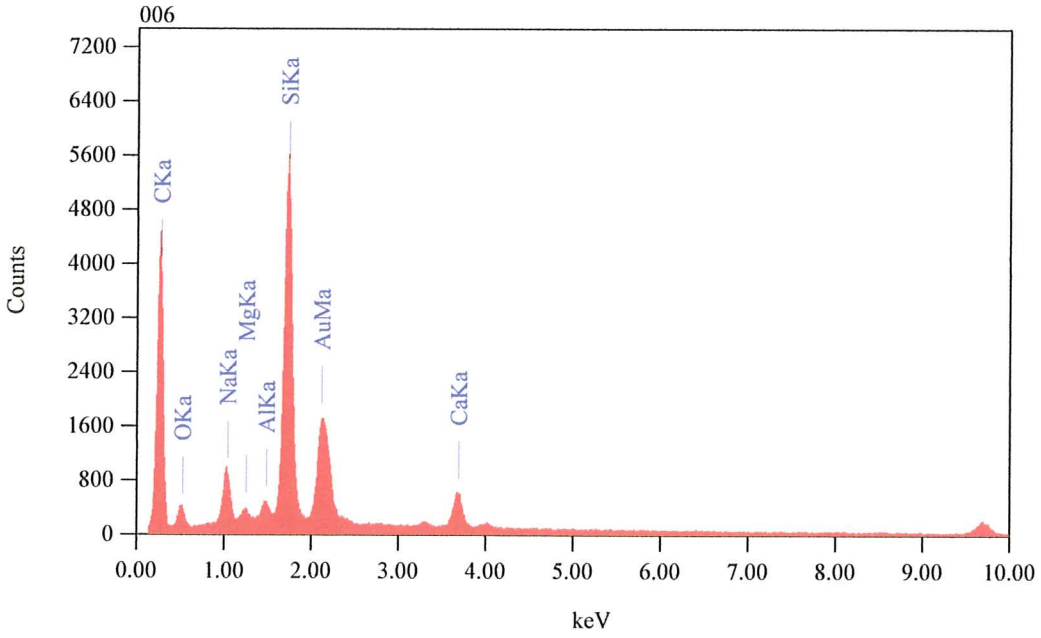
JED-2300 AnalysisStation

RPS

09-035333 09S68Gv002



Title	: IMG2
Instrument	:
Volt	: 20.00 kV
Mag.	: x 5,500
Date	: 2009/09/11
Pixel	: 640 x 480



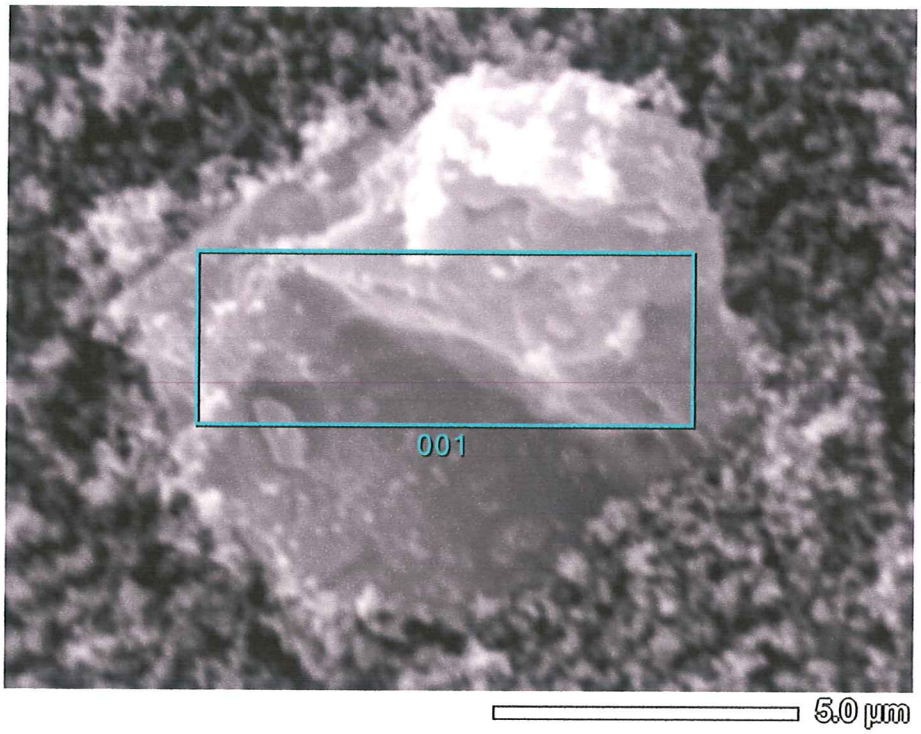
Acquisition Parameter
Instrument : 6490(LA)
Acc. Voltage : 20.0 kV
Probe Current: 1.00000 nA
PHA mode : T2
Real Time : 53.71 sec
Live Time : 50.00 sec
Dead Time : 6 %
Counting Rate: 5286 cps
Energy Range : 0 - 20 keV

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxide)
Fitting Coefficient : 0.3650
Total Oxide : 24.0

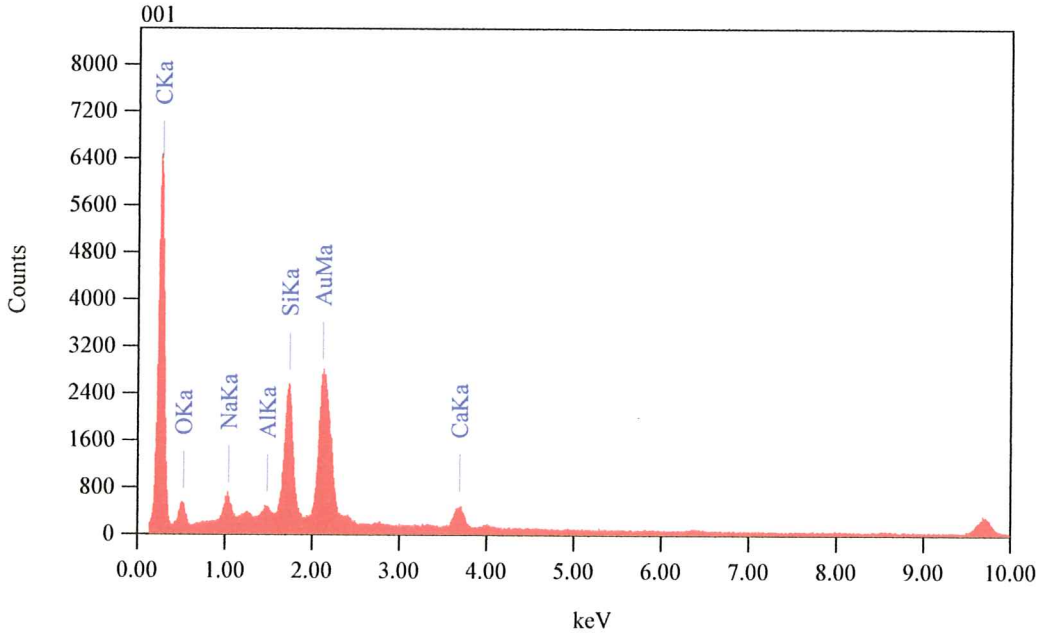
Element	(keV)	Mass%	Error%	Mol%	Compound	Mass%	Cation	K
C K	0.277	58.48	0.15	90.88	C	58.48	0.00	41.6539
O		14.54						
Na K	1.041	2.29	0.22	0.93	Na2O	3.09	2.64	4.5628
Mg K	1.253	0.40	0.22	0.31	MgO	0.66	0.43	0.6641
Al K	1.486	0.71	0.23	0.25	Al2O3	1.35	0.70	1.4000
Si K	1.739	9.29	0.25	6.18	SiO2	19.88	8.74	21.3787
Ca K	3.690	1.87	0.26	0.87	CaO	2.61	1.23	5.0927
Au M	2.121	12.41	0.53	0.59	Au2O3	13.93	1.66	25.2479
Total		100.00		100.00		100.00	15.40	

RPS

09-035333 09S68GV002



Title	: IMG2
Instrument	:
Volt	: 20.00 kV
Mag.	: x 8,500
Date	: 2009/09/11
Pixel	: 640 x 480



Acquisition Parameter
Instrument : 6490(LA)
Acc. Voltage : 20.0 kV
Probe Current: 1.00000 nA
PHA mode : T2
Real Time : 53.87 sec
Live Time : 50.00 sec
Dead Time : 7 %
Counting Rate: 5800 cps
Energy Range : 0 - 20 keV

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxide)
Fitting Coefficient : 0.3164
Total Oxide : 24.0

Element	(keV)	Mass%	Error%	Mol%	Compound	Mass%	Cation	K
C K	0.277	66.78	0.12	95.75	C	66.78	0.00	52.3753
O		7.89						
Na K	1.041	1.18	0.21	0.44	Na2O	1.59	2.50	1.9723
Al K	1.486	0.39	0.22	0.13	Al2O3	0.74	0.71	0.6596
Si K	1.739	3.85	0.24	2.36	SiO2	8.23	6.66	7.5986
Ca K	3.690	1.17	0.26	0.50	CaO	1.64	1.42	2.6673
Au M	2.121	18.73	0.48	0.82	Au2O3	21.01	4.63	34.7268
Total		100.00		100.00		100.00	15.92	

RPS

Analyse Certificaat

RPS Analyse B.V.
E analyse@rpsgroep.nl
W www.rpsgroep.nl
Bank HBU 62 23 48 175
KvK 20059540
Ulvenhout
Tolweg 11
PO Box 3440, 4800 DK
Breda
T 031(0)76 - 587 99 10
F 031(0)76 - 587 98 80
Hoogeveen
Zeppelinstraat 9
PO Box 2030, 7900 BA
T 031(0)528 - 22 90 10
F 031(0)528 - 22 90 18

Rapportagedatum	:	23 september 2009
RPS Analyse projectnummer	:	0909-0610
RPS Analyse monsternummer	:	09-035334
Opdrachtgever	:	Oranjewoud B.V.
Adres	:	Rivium Westlaan 72
Postcode en plaats	:	2909 LD Capelle a/d IJssel
Land	:	
Projectnummer opdrachtgever	:	-
Lokatie monstername	:	-
Datum monstername	:	-
Monstergegevens afkomstig van	:	Oranjewoud B.V.
Monsternummer opdrachtgever	:	09S68GV007
Lokatie monster	:	Na reactor
Opmerking(en)	:	-
Soort monster / medium	:	25 mm glasvezel
Volume lucht (l)	:	-

Analyseresultaat

Het monster is onderzocht m.b.v. electronenmicroscopie met rontgen micro analyse (SEM-EDX).

Op het filter is de concentratie koolstof t.o.v. monster 09-035333 verwaarloosbaar klein als een elementen scan van het filter oppervlak wordt gemaakt.
Er is echter wel koolstof aanwezig dat niet goed zichtbaar is door de hoge concentratie silicium, natrium, calcium, magnesium en aluminium afkomstig van de onderliggende glasvezel.
De aanwezigheid van goud komt door de monstervoorbehandeling waarbij een dunne goudlaag op het preparaat wordt gedampt.
Wordt het materiaal onderzocht wat zich heeft afgezet op de glasvezel dan zijn plaatselijk klontjes en "druppeltjes" zout waarneembaar. Er zijn op sommige plaatsen kristalletjes op en tussen de glasvezel gevonden.
De elementen in het materiaal op de glasvezel zijn natrium, zuurstof en koolstof. De elementen in de kristalletjes zijn vaak uitsluitend natrium en zuurstof.
Op grond van de beschrijving van het proces in de reactor is de hypothese dat de luchtstroom uit de reactor zeer kleine druppeltjes wasvloeistof met loog meeneemt, waarin het door verbranding van koolstof gevormde kooldioxide is afgevangen. Deze druppeltjes bevatten dan overwegend natriumcarbonaat en natriumhydroxide.
Mogelijk is in het hete plasma in de reactor ook natriumoxide gevormd. De massatoename van het filter is derhalve toe te schijven aan natriumhydroxide en natriumcarbonaat van de wasvloeistof en deels aan het (kristal)water dat in deze stoffen achterblijft

Zie ook de bijlagen 09-035334 (4 stuks).

Opmerkingen:
--

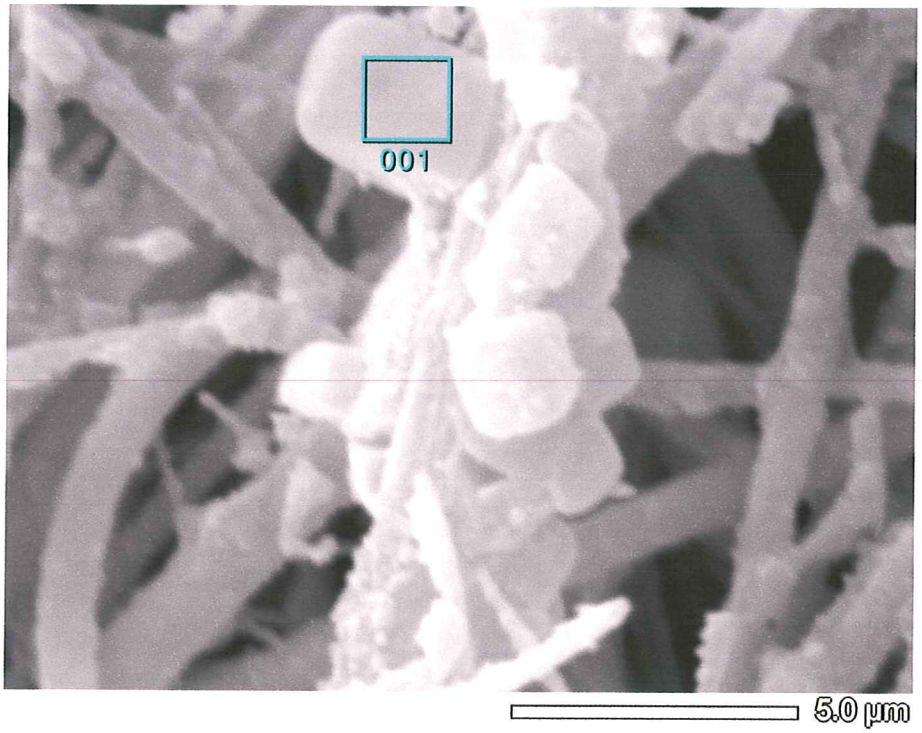
Dit onderzoek had plaats met als doel de aanwezigheid van bovenstaande componenten aan te tonen.
Alleen aan het originele complete Analyse Certificaat kunnen rechten worden ontleend.
Dit rapport mag uitsluitend in zijn geheel worden gereproduceerd.
De resultaten hebben uitsluitend betrekking op het aangeboden monster
* Deze analyseresultaten zijn berekend op basis van (evt. door opdrachtgever) opgegeven meettijd en volume.
< = het analyseresultaat is kleiner dan de rapportagegrens van de betreffende analysemethode.
De analyses gemerkt met een "Q" zijn geaccrediteerd door RvA Testen, registratie onder nummer L192
Onder M.O. wordt verstaan de meetonzekerheid, k=2 (excl. monstername)

Operationeel Manager

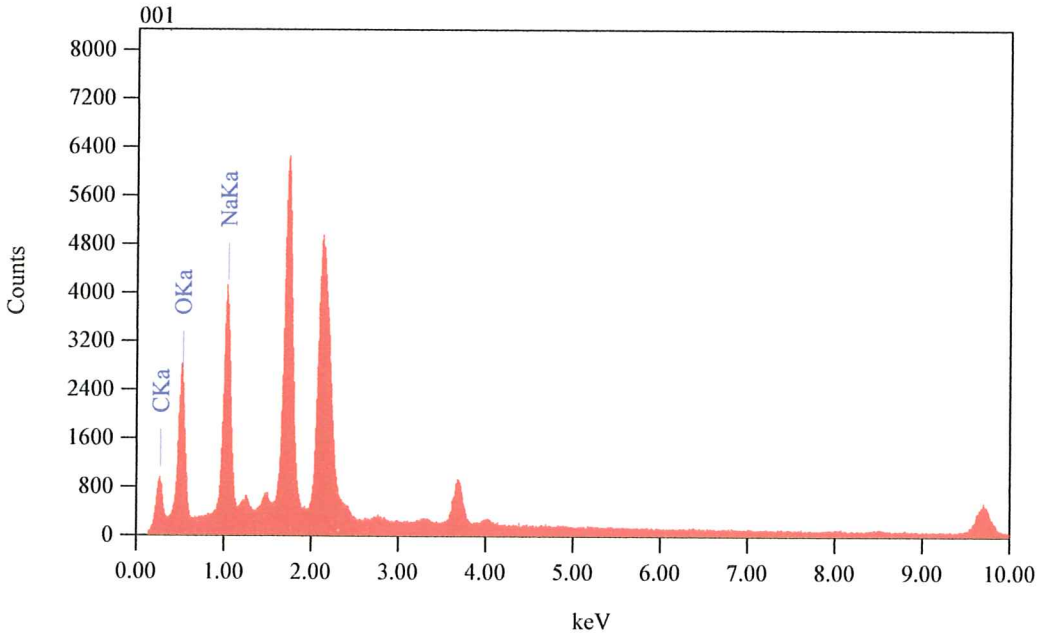
J.Kegelaer

RPS

09-035334 09S68GV007



Title	: IMG2
Instrument	:
Volt	: 20.00 kV
Mag.	: x 8,000
Date	: 2009/09/21
Pixel	: 640 x 480



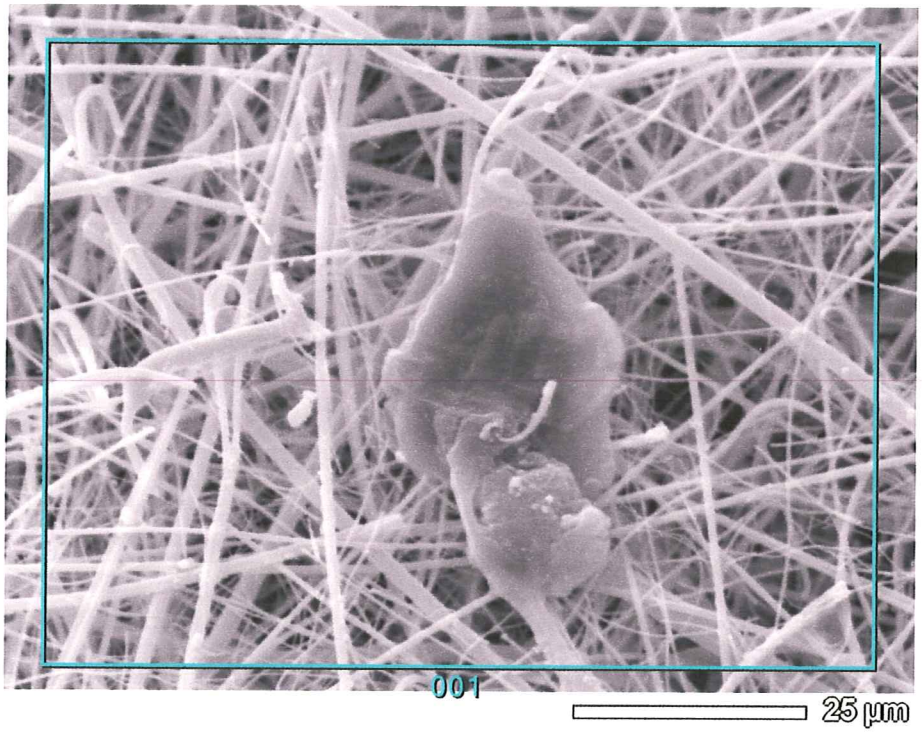
Acquisition Parameter
Instrument : 6490(LA)
Acc. Voltage : 20.0 kV
Probe Current: 1.00000 nA
PHA mode : T2
Real Time : 56.66 sec
Live Time : 50.00 sec
Dead Time : 11 %
Counting Rate: 9033 cps
Energy Range : 0 - 20 keV

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis
Fitting Coefficient : 0.7498

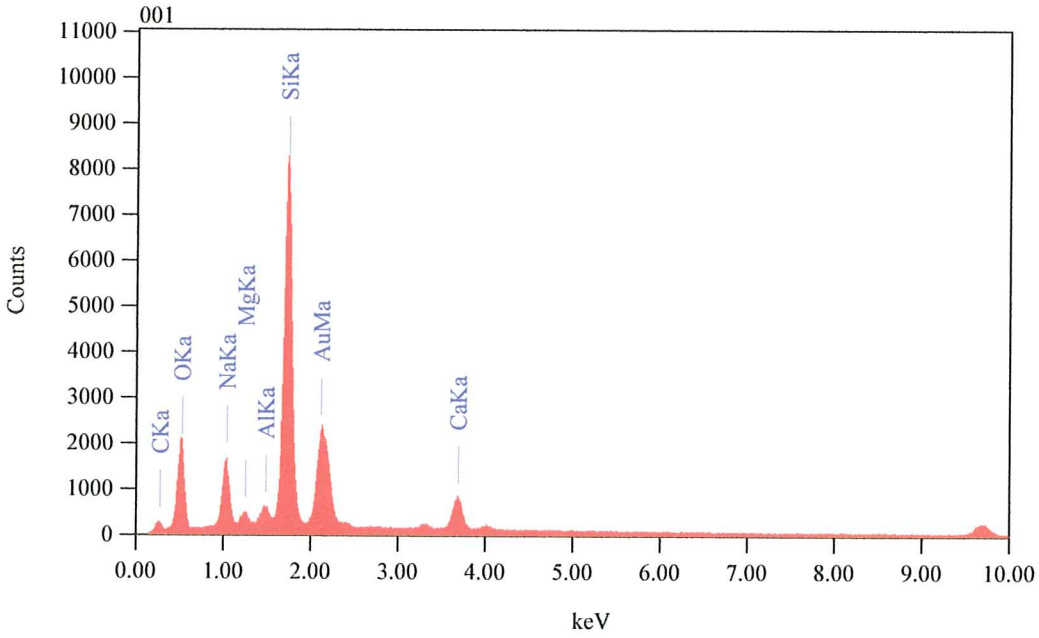
Element	(keV)	Mass%	Error%	Atom%	Compound	Mass%	Cation	K
C K	0.277	28.52	0.91	37.63				12.7577
O K*	0.525	43.52	1.39	43.10				54.2975
Na K	1.041	27.96	1.01	19.27				32.9448
Total		100.00		100.00				

RPS

09-035334 09S68GV007



Title	: IMG2
Instrument	:
Volt	: 20.00 kV
Mag.	: x 1,300
Date	: 2009/09/11
Pixel	: 640 x 480



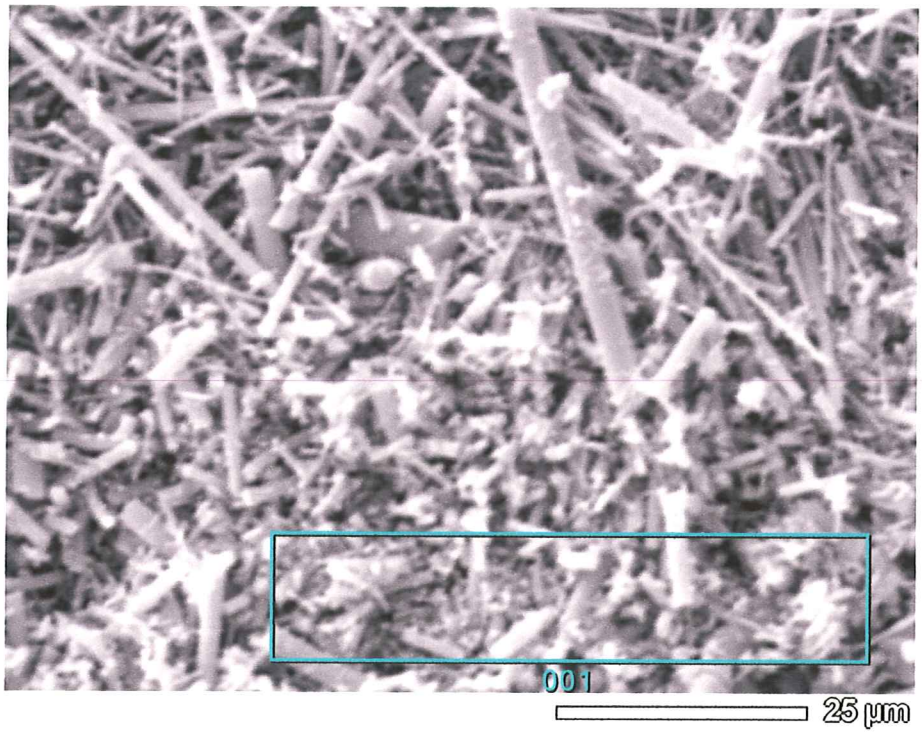
Acquisition Parameter
Instrument : 6490(LA)
Acc. Voltage : 20.0 kV
Probe Current: 1.00000 nA
PHA mode : T2
Real Time : 54.75 sec
Live Time : 50.00 sec
Dead Time : 8 %
Counting Rate: 6383 cps
Energy Range : 0 - 20 keV

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxide)
Fitting Coefficient : 0.2958
Total Oxide : 24.0

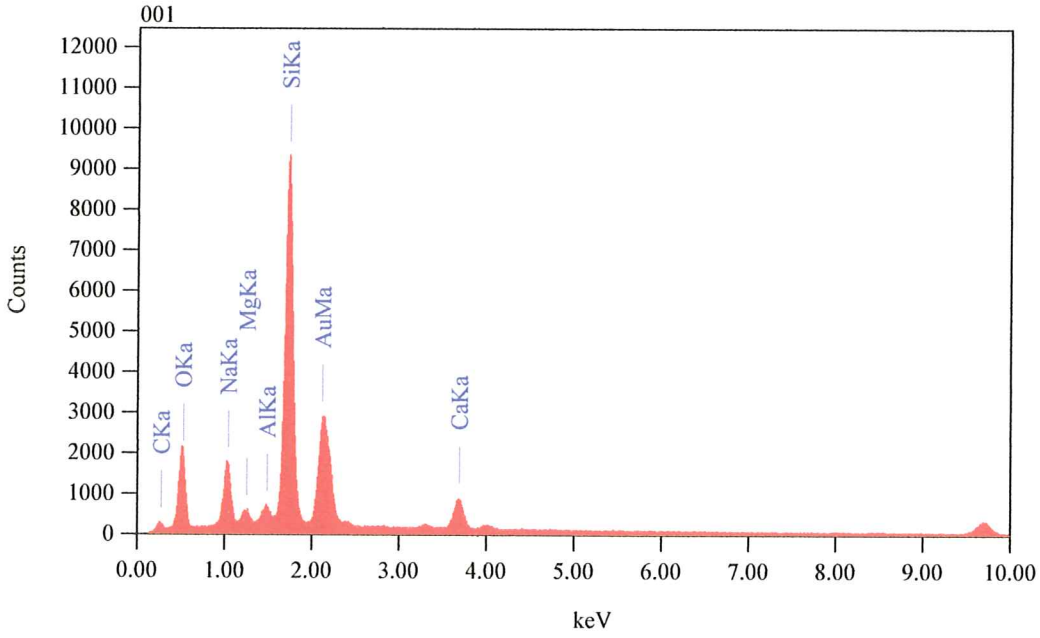
Element	(keV)	Mass%	Error%	Mol%	Compound	Mass%	Cation	K
C K	0.277	8.08	0.33	37.88	C	8.08	0.00	2.5083
O		32.58						
Na K	1.041	5.95	0.26	7.28	Na2O	8.02	3.05	9.3519
Mg K	1.253	1.05	0.28	2.44	MgO	1.74	0.51	1.3184
Al K	1.486	1.42	0.28	1.48	Al2O3	2.69	0.62	2.1340
Si K	1.739	20.97	0.31	42.05	SiO2	44.87	8.80	37.5852
Ca K	3.690	3.64	0.32	5.11	CaO	5.09	1.07	7.7971
Au M	2.121	26.32	0.68	3.76	Au2O3	29.52	1.57	39.3051
Total		100.00		100.00		100.00	15.62	

RPS

09-035334 09S68GV007



Title	: IMG2
Instrument	:
Volt	: 20.00 kV
Mag.	: x 1,400
Date	: 2009/09/11
Pixel	: 640 x 480



Acquisition Parameter
Instrument : 6490(LA)
Acc. Voltage : 20.0 kV
Probe Current: 1.00000 nA
PHA mode : T2
Real Time : 55.41 sec
Live Time : 50.00 sec
Dead Time : 9 %
Counting Rate: 7214 cps
Energy Range : 0 - 20 keV

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxide)
Fitting Coefficient : 0.2827
Total Oxide : 24.0

Element	(keV)	Mass%	Error%	Mol%	Compound	Mass%	Cation	K
C K	0.277	7.15	0.31	35.56	C	7.15	0.00	2.2008
O		32.01						
Na K	1.041	5.81	0.25	7.55	Na2O	7.84	3.03	8.9552
Mg K*	1.253	1.10	0.26	2.71	MgO	1.83	0.54	1.3547
Al K	1.486	1.29	0.27	1.43	Al2O3	2.43	0.57	1.8944
Si K	1.739	20.44	0.29	43.48	SiO2	43.72	8.73	35.9764
Ca K	3.690	3.28	0.30	4.88	CaO	4.58	0.98	6.8493
Au M	2.121	28.93	0.64	4.39	Au2O3	32.46	1.76	42.7691
Total		100.00		100.00		100.00	15.62	