

STIKSTOFOKSIEDVORMING IN HUISHOUDELIKE OSOONGENERATORS

R. M. Rademeyer Hons. B.Sc.

Verhandeling voorgelê vir die gedeeltelike nakoming van die vereistes vir die graad Magister Scientiae in Chemie aan die Noordwes-Universiteit

Studieleier: Dr. G. Lachmann

Hulpstudieleier: Prof. O. C. de Jager

Mei 2006

Potchefstroom

Inhoudsopgawe

1	Opsomming en doel van die ondersoek	1
1.1	Opsomming.....	1
1.2	Summary	3
1.3	Doel van ondersoek.....	5
2	Literatuurondersoek.....	7
2.1	Inleiding.....	7
2.2	Die vervaardiging van osoon	8
2.2.1	Gasontladingsplasmas gevorm deur elektriese ontlading	8
2.3	Osoonvorming in 'n elektriese veld	9
2.3.1	Osoonvervaardiging met suurstof as gas in osoongenerators.....	9
2.3.2	Osoonvervaardiging met lug as gas in osoongenerators	11
2.4	Osoongenerators.....	15
2.4.1	Ontwerpspesifikasies van osoongenerators wat osoonproduksie beïnvloed	15
2.4.1.1	Tipes diëlektriese of stilontladings	15
2.4.1.2	Diëlektriese materiaal	17
2.4.1.2.1	Eienskappe van die diëlektriese laag wat 'n invloed het op osoonproduksie.....	18
2.4.1.3	Vervaardigingsmateriaal van die osoongenerator	19
2.4.1.4	Materiaal van die elektrodes	20
2.4.1.5	Die fisiese dimensies van die aanslaningsruimte	20
2.4.1.5.1	Plasing van die elektrodes	20

2.4.1.6	Elektrodespanning	21
2.4.1.6.1	Hoëspanningspulse	21
2.4.1.6.2	Frekwensie	23
2.4.1.6.3	Kragtoevoer	24
2.4.1.7	Gasdruk	25
2.4.1.8	Polariteit van die korona	26
2.4.1.9	Gasvloei en stroomsterkte	27
2.4.1.10	Tipe en samestelling van die deurvloeigas.....	30
2.4.1.10.1	Suurstof	30
2.4.1.10.2	Stikstof.....	30
2.4.1.10.3	Koolstofdioksied.....	31
2.4.1.10.4	Humiditeit.....	32
2.4.1.10.5	Kwik.....	35
2.4.1.10.6	Stikstofoksiede	35
2.4.1.10.7	Organiese onsuiwerhede	35
2.4.1.11	Temperatuurbeheer toegepas op die osoongenerator	36
2.4.2	Osoonmeting by osoongenerators	40
2.4.2.1	Monsterneming	40
2.4.2.2	Die meet van osoon in die gasvorm	40
2.4.2.2.1	Jodometrie	41
2.4.2.2.2	Chemiluminessensie	43
2.4.2.2.3	UV-spektrofotometrie	44
2.4.3	Stikstofoksiedmeting by osoongenerators	44

2.4.4	Veiligheidsmaatreëls vir die gebruik van osoon en stikstofoksied	46
2.4.4.1	Toksiteitstandaarde.....	46
2.4.4.2	Akute vergiftiging	47
2.4.4.3	Kroniese vergiftiging	47
2.4.4.4	Skade aan die omgewing	48
2.4.4.5	Hantering van osoon.....	48
2.4.4.6	Voorkomende maatreëls.....	48
2.5	Opsomming en kommentaar oor die literatuurstudie	49
3	Eksperimentele besonderhede.....	51
3.1	Navorsingskema.....	51
3.2	Eksperimentele benadering	52
3.3	Chemikalieë.....	52
3.4	Gas	52
3.5	Water	52
3.6	Apparaat.....	52
3.6.1	Ozone Buddy©-osoongenerator	52
3.6.2	Sterizone©.....	54
3.6.3	Osoongenerator met verstelbare frekwensie	58
3.6.4	Ecozein©-osoongenerator	60
3.6.5	Shimadzu Graphicord UV-240 en Ultrospec 3000 UV-sigbarelig-spektrofotometers	61
3.6.6	Fisher controls 2000 (RA 341620) en GEC Marconi-rotameters	62

3.6.7	Termokoppel.....	62
3.6.8	Waters-loonchromatograaf	62
3.7	Algemene apparaatopstelling en metode	64
3.7.1	Berekeninge	66
3.7.1.1	Osoonkonsentrasie.....	66
3.7.1.2	Die berekening van osoonkonsentrasie vir die jodometriese metode	67
3.7.1.3	Die berekening van osoonkonsentrasie en -produksie met die UV-absorbansie by 254 nm.....	67
3.7.1.4	Die berekening van stikstofoksiedkonsentrasie en -produksie	69
3.7.2	Jodometriese bepaling van osoonkonsentrasie	70
3.7.3	UV-spektrofotometriese bepaling van osoonproduksie	73
3.7.4	Loonchromatografiese bepaling van stikstofoksiedproduksie.....	73
3.7.5	Kwaliteitbeheer	75
3.7.5.1	Die invloed van apparaatopstelling op die NO _x -bepaling.....	77
3.7.6	Vergelyking van huishoudelike osoongenerators	77
3.7.6.1	Osoon- en stikstofkonsentrasiebepalings van die Buddy©.....	78
3.7.6.2	Die osoon- en stikstofoksiedkonsentrasiebepalings van Ecozein©	79
3.8	Invloed van bedryfsparameters op Sterizone©	80
3.8.1	Die invloed van sintetiese lugvloeい op die osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©.....	80
3.8.2	Die invloed van waterdampdruk op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©.....	85
3.8.3	Die invloed van suurstof/stikstofverhouding van die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©	88

3.8.4	Die invloed van kontaminante in die toevoergas op osoonproduksie deur Sterizone©.....	90
3.8.5	Die invloed van koolstofdioksied en waterdamp in die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©	91
3.8.6	Die invloed van frekwensie op osoon- en stikstofoksiedproduksie	93
3.8.7	Die invloed van die temperatuur van die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©	94
3.8.8	Die vasstelling van die teenwoordigheid van reaktiewe spesies buite die ontladingsruimte van Sterizone©	99
3.8.9	Die invloed van die lengte van silikoonrubberpypkonneksies op die NO _x in die uitlaatgas van Sterizone©	99
4	Projekevaluering.....	101
4.1	Voorstelle vir die beheer van NO_x.....	103
4.2	Voorstelle vir verdere ondersoeke	104
4.3	Bylae.....	105
4.3.1	Bylae vir spektroskopiese notasie van elektroniese oorgange van O ₂ en N ₂	105
4.3.2	Bylae vir afkortings en verduideliking van terme	107
4.3.3	Bylae vir Suid-Afrika: Wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993	108
4.4	Bronnelys	109
4.5	Dankbetuigings.....	114

Lys van Figure

Figuur 2.1	Die potensiële energievlake van O₂ en N₂.....	13
Figuur 2.2	Tipes elektriese ontladings.....	16
Figuur 2.3	Spanning- en stroomgolfvorm: (a) Sinusgolwe by 80 kHz (b) Ultrakort blokvormige hoëspanningspulse	22
Figuur 2.4	Die vermeerdering van osoonproduksie met blokvormige hoëspanningspulse.....	23
Figuur 2.5	N₂O-, N₂O₅- en O₃-opbrengs in osoongenerators	25
Figuur 2.6	Die effek van druk op osoonproduksie.....	26
Figuur 2.7	Die effek van gasvloei en kraguitset op osoonproduksie.....	27
Figuur 2.8	Die invloed van lugvloei en stroomsterkte op NO-konsentrasie.....	28
Figuur 2.9	Die invloed van ontladingstroom op NO₂-konsentrasie by wisselende lugvloei.....	28
Figuur 2.10	Osoon- en NO_x-konsentrasie teenoor stroom	29
Figuur 2.11	Die invloed van lugvloei op osoonkonsentrasie	29
Figuur 2.12	Die invloed van die % suurstof in gasmengsels op osoonproduksie.....	30
Figuur 2.13	Die invloed van lughumiditeit op osoonproduksie	34
Figuur 2.14	Die invloed van koolwaterstowwe op osoonopbrengs	35
Figuur 2.15	Die gepatenteerde NO_x-reguleerder van Wu, R.	36

Figuur 2.16	Osoonkonsentrasie teenoor energiedigtheid in lug en suurstof vir oppervlakte- en volume-ontlading	38
Figuur 2.17	N₂O₅-konsentrasie teenoor energiedigtheid vir oppervlakte- en volume- ontlading.....	39
Figuur 2.18	Die invloed van waterverkoeling op osoonopbrengs	40
Figuur 3.1	Ozone Buddy© Tipe OB-MRK1 serienommer OB\SA00615	53
Figuur 3.2	Sterizone©-syaansig	54
Figuur 3.3	Elektrodesamestelling van die koronadop van Sterizone©.....	55
Figuur 3.4	Skematiese voorstelling van die afmetings van die Sterizone©-elektrode	55
Figuur 3.5	Selfossillerende stroombaan vir die elektrodesamestelling van Sterizone©.....	56
Figuur 3.6	Spanningsgolfvorm by die hoëspanninguitgang van die Sterizone©-stroombaan gemeet.....	58
Figuur 3.7	Osoongenerator met verstelbare frekwensie	59
Figuur 3.8	Skematiese voorstelling van osoongenerator met verstelbare frekwensie se golfvorm.....	59
Figuur 3.9	Ecozein©.....	60
Figuur 3.10	Skematiese voorstelling van Ecozein©-golfvorm	61
Figuur 3.11	UV-spektrofotometervloeisel	62
Figuur 3.12	Algemene apparaatopstelling	64

Figuur 3.13	Die invloed van sintetiese lugvloeい op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©	81
Figuur 3.14	Die invloed van sintetiese lugvloeい op NO_x/O₃-produksie en temperatuur van Sterizone©	82
Figuur 3.15	Verwyltyd van gas in die ontladingsgaping van Sterizone©	83
Figuur 3.16	Invloed van waterdampdruk op O₃- en NO_x- produksie deur Sterizone© by sintetiese lugvloeい 49.16 en 101.31 cm³/s	86
Figuur 3.17	Die invloed van toenemende O₂ in die O₂/N₂-gastoevoer op die O₃- en NO_x-produksie deur Sterizone©	89
Figuur 3.18	Die invloed van toenemende N₂ in die O₂/N₂-gastoevoer op die O₃- en NO_x-produksie deur Sterizone©	89
Figuur 3.19	O₃- en NO_x- produksie van die osoongenerator met verstelbare frekwensie by toenemende frekwensie en sintetiese lugvloeい (a) 25.19, (b) 46.88 en (c) 70,48 cm³/s.....	93
Figuur 3.20	Die invloed van die uitvloeitemperatuur op die % energiedoeltreffenheid van Sterizone©.....	95
Figuur 4.1	Pulsstroomontlading.....	102
Figuur 4.2	Blokvormige spanningspuls	102

Lys van Tabelle

Tabel 2.1	Die bydrae van O ₂ en N ₂ tot osoonvorming in lug relatief tot suiwer suurstof.....	12
Tabel 2.2	Eienskappe van mikro-ontladings in lug	17
Tabel 3.1	Vergelyking van osoonbepalings met behulp van die jodometriese en UV-spektrofotometriese metodes.....	72
Tabel 3.2	Osoon- en stikstofkonsentrasiebepalings van Buddy©	78
Tabel 3.3	Die osoon- en stikstofoksiedkonsentrasiebepalings van Ecozein©	79
Tabel 3.4	Vergelyking van Buddy© met Ecozein©	79
Tabel 3.5	Die invloed van sintetiese lugvloeい op NO _x /O ₃ -produksieverhouding deur Sterizone©.....	82
Tabel 3.6	Die invloed van suurstofvloeい op die osoonproduksie deur Sterizone	84
Tabel 3.7	% O ₃ -produksie-afname en % NO _x -produksietoename by droë sintetiese lugvloeい (101,31 cm ³ /s) en sintetiese lugvloeい (101,31 cm ³ /s) met waterdampdruk 0 en 1,7 kPa	86
Tabel 3.8	% O ₃ -produksie-afname by suurstofvloeい 101,31 cm ³ /s met waterdampdruk van 0 tot 1,7 kPa	87
Tabel 3.9	Die invloed van kontaminante in die toevoergas op osoonproduksie deur Sterizone©	91
Tabel 3.10	Die invloed van koolstofdioksied en waterdamp in die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©.....	92

Tabel 3.11	Die effek van toenemende temperatuur en afnemende gasvloei op O₃- en NO_x- produksie van die osoongenerator met verstelbare frekwensie	93
Tabel 3.12	Toevoergasverkoeling van Sterizone©	95
Tabel 3.13	O₃-produksietoename en NO_x-produksie-afname met afnemende toevoergastemperatuur.....	96
Tabel 3.14	Die invloed van die tipe invloeigas op die uitlaatgastemperatuur van Sterizone©.....	96
Tabel 3.15	Die invloed van seisoenale kamertemperatuurwisseling op die uitlaatgastemperatuur en O₃-produksie deur Sterizone©: 1.....	97
Tabel 3.16	Die invloed van seisoenale kamertemperatuurwisseling op die uitlaatgastemperatuur en O₃-produksie deur Sterizone©: 2.....	97
Tabel 3.17	Die vasstelling van reaktiewe spesies buite die ontladingsruimte van Sterizone©.....	99
Tabel 3.18	Die invloed van die lengte van silikoonrubberpypkonneksies op die NO_x in die uitlaatgas van Sterizone©	100

Lys van Berekeninge

Berekening 1	Osoonkonsentrasie (% O₃ v/v) met die formule van Gordon, S. A. et al. (2000: 13).....	67
Berekening 2	Osoonkonsentrasie (% O₃ v/v) met die formule van Dennis, L. M. (1920: 181).....	67
Berekening 3	Osoonkonsentrasie (% O₃ v/v) met die UV-absorbansie by 254 nm.....	67
Berekening 4	Osoonkonsentrasie met die formule van Williams, S. et al. (2002: 998).....	69
Berekening 5	Berekening van osoonproduksie (g O₃/kWh) met die UV-absorbansie by 254 nm	69
Berekening 6	Die berekening van stikstofoksiedkonsentrasie	69
Berekening 7	Berekening van stikstofoksiedproduksie (g NO_x/kWh).....	70

HOOFSTUK 1

1 Opsomming en doel van die ondersoek

1.1 Opsomming

Osoon (O_3) word as steriliseerder van lug en water gebruik, maar die stikstofoksiede (NO_x) is skadelik vir die mens en omgewing. Osoongenerators slaan elektrone aan na hoër energievlakke sodat O_3 en NO_x uit die suurstof en stikstof in die lugtoevoer vervaardig word.

Die dissosiasie-energie van O_2 ($B\ ^3\Sigma_u^-$) is 6,0 eV, die energie vir die opwekking van N_2 ($^1\Sigma_g^+$) na N_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) 6,07 eV en die dissosiasie-energie van N_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) 6,2 eV. Dié energievlakke is so na aan mekaar dat energie-oordrag in die statistiese gebied bo die ontlading na die opwekking van O_2 plaasvind. In dié gebied word N_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) ook gedissosieer, daarom kan O_3 -produksie in lug nie geskei word van NO_x -produksie nie.

Ondersoek is ingestel na die faktore wat NO_x -produksie in huishoudelike osoongenerators, in die besondere Sterizone[®]-osoongenerators, bepaal sodat die ontwerp, bedryf en bemarkbaarheid daarvan verbeter kan word.

Sterizone[®]-osoongenerators is ontwerp met 'n buitengewoon vinnige elektrieseveldverandering van 3×10^8 V mm $^{-1}$ s $^{-1}$, met die doel om osoonproduksie te optimaliseer en NO_x -produksie te verminder. In die studie is gevind dat Sterizone[®] wel NO_x produseer.

Nadat die analitiese metodes geoptimaliseer is, is ondersoek ingestel na die invloed van die volgende reaksiekondisies op die O_3 - en NO_x -produksie deur Sterizone[®]:

- 1) Sintetiese lugvloeい
- 2) Waterdampdruk van die toevoergas
- 3) N_2/O_2 -verhouding van die toevoergas
- 4) Kontaminante in die lugvloeい
- 5) CO_2 in die lugvloeい
- 6) Verandering van die frekwensie van pulse
- 7) Temperatuur van die toevoergas

Daar is gevind dat die Sterizone[®]-eenheid vergelykbare eienskappe met ander osoongenerators toon. Hoë temperature verlaag die osoonproduksie sodat die lugvloeい hoog genoeg moet bly om oorverhitting te voorkom wat tot hoë NO_x/O_3 -verhoudings lei.

Die osoonproduksie deur Sterizone[©] is afhanklik van die omgewingslugkwaliteit. Lughumiditeit en kontaminante soos dieselbrandstof, etanol-, paraffien- en xileendampe lei tot 'n drastiese afname in O₃-produksie. Koolsuurgas daarteen veroorsaak 'n veel kleiner afname in osoonproduksie.

Daar is geen reaksiekondisies gevind wat 'n beduidende verlaging op NO_x-produksie het nie.

Stikstofoksiedbepalings was problematies en beter analitiese metodes moet ontwikkel word. Daar word voorgestel dat ondersoek ingestel word na die moontlikheid om die stikstofoksiede met 'n eksterne filter te verwijder of dié produkte met ultravioletbestraling te verminder. Die ontwikkeling van 'n meer volledige teoretiese model vir osoonvormingsprosesse sal 'n bate vir die optimalisering van osoongenerators wees.

1.2 Summary

Ozone (O_3) is used as a steriliser of air and water, but the nitrogen oxides (NO_x) are harmful to man and the environment. Ozone generators excite electrons to higher energy levels so that O_3 and NO_x can be manufactured from oxygen and nitrogen in the air feed.

The dissociation energy of O_2 ($B\ ^3\Sigma_u^-$) is 6,0 eV, the excitation energy of N_2 ($^1\Sigma_g^+$) to N_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) 6,07 eV and the dissociation energy of N_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) 6,2 eV. The energy levels are so near to one another that the energy transfer takes place in the statistical area above the discharge to the excitation of O_2 . In this area N_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) is also dissociated, therefore O_3 production in air cannot be separated from NO_x production.

The factors that influence the NO_x production in domestic ozone generators, in particular Sterizone[©] ozone generators were investigated, so that their design, operation and marketability could be improved.

Sterizone[©] ozone generators are designed with an exceptionally fast change in electrical field of $3 \times 10^8\ V\ mm^{-1}\ s^{-1}$, with the aim of optimising ozone production and decreasing NO_x production. In this study it was found that Sterizone[©] does produce NO_x .

After optimising the analytical methods, the influence of the following reaction conditions on the production of O_3 and NO_x by Sterizone[©] was investigated:

- 1) Feed of synthetic air
- 2) Water vapour pressure of the feed gas
- 3) N_2/O_2 ratio of the feed gas
- 4) Contaminants in the air feed
- 5) CO_2 in the air feed
- 6) Change in the frequency of the pulses
- 7) Temperature of the feed gas

It was found that the Sterizone[©] unit showed comparable properties with other ozone generators. High temperatures lower the ozone production so that the air feed must remain sufficiently high to prevent overheating which leads to high NO_x/O_3 ratios.

The ozone production of Sterizone[©] is dependent on the quality of the environmental air. Air humidity and contaminants like diesel fuel, ethanol, parraffin and xylene vapours lead to a drastic decrease in O_3 production. Carbon dioxide on the other hand causes a much smaller decrease in ozone production.

No reaction conditions were found that led to a significant lowering of NO_x production.

The determination of nitrogen oxides was problematic and better analytical methods should be developed. It is recommended that an investigation is done into the possibility of removing the nitrogen oxides by means of an external filter or decreasing the product by means of ultraviolet radiation. The development of a more comprehensive theoretical model for the ozone formation processes will be beneficial to the optimisation of ozone generators.

1.3 Doel van ondersoek

Osoongenerators wat met lug bedryf word genereer osoon sowel as stikstofoksied (NO_x). Osoon word as steriliseerde van lug en water gebruik, maar die NO_x is skadelik vir die mens en omgewing.

Wanneer osoon vervaardig word met lug as toevoergas kan die stikstofdioksied (NO_2) konsentrasies van 4 dpm bereik, wat hoër is as die beroepsdrempelwaarde van 3 dpm. Langtermynblootstelling aan 0,05 tot 0,1 dpm NO_2 lei tot kroniese trageobrongitis as gevolg van beskadiging van die asemhalingsweë. Blootstelling aan konsentrasies hoër as 2,5 dpm NO_2 lei tot obstruksie van die lugweë en 0,074 dpm NO_2 beïnvloed nagsig nadelig.

Suid-Afrika se standaarde vir die drempelwaardes van stikstofoksiede as byprodukte van O_3 -vervaardiging is die volgende:

Die beroepsblootstellingsdrempel vir agt uur is vir NO_2 3 dpm of 5 mg/m^3 . Die tydsbeswaardegemiddelde vir 15 minute is vir NO_2 5 dpm of 9 mg/m^3 (sien bylae 4.3.3: Suid-Afrika: Wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993. Regulasies vir gevaaarlike chemiese substansies).

Osoongenerators wat met lug bedryf word, moet dus so ontwerp word dat stikstofoksiedvorming beperk word. Die reaksie van NO_x met water vorm salpetersuur wat skade aan die omgewing veroorsaak.

Die doel van hierdie ondersoek was:

- Ondersoek na die faktore wat stikstofoksiedproduksie in osoongenerators bepaal.
- Die maak van voorstelle vir die verbetering van die ontwerp en bedryf van die hoëfrekwensie tipe osoongenerator soos deur die skool vir Fisika aan die Noordwes-Universiteit ontwikkel is.
- 'n Bydrae tot die verhoging van die bemarkbaarheid van bogenoemde osoongenerator.

HOOFSTUK 2

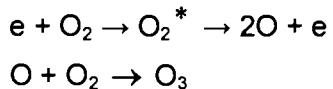
2 Literatuurondersoek

2.1 Inleiding

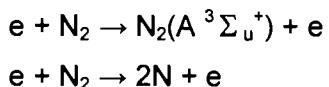
Die vervaardiging, meting en hantering van osoon is drie aspekte van belang in 'n samelewing waar stedelike en landelike gebiede dikwels deur intense lugbesoedeling versmoor word. Osoon as bedreiging vir die omgewingsgesondheid word in sekondêre reaksies deur besoedelstowwe gevorm. Aan die ander kant kan osoon gebruik word om besoedelstowwe in water en lug af te breek. In dié oopsig is osoon deel van die oplossing van die probleem. Industriële en huishoudelike aanwending van osoongenerators vir die suiwering van water en lug vereis tegelykertyd tegnologie en kennis van die vervaardiging, meting en hantering van osoon.

Osoon word wyd aangewend vir die behandeling van drinkwater, swembadwater, soutwaterakwariums en voedsel. Medisinale osoon was 'n kontroversiële besprekingspunt sedert die invoering van osoontterapie in 1950. Gedetailleerde kennis van die farmakologiese eienskappe van osoon is eers in die laaste tyd verkry en het geleid tot die ingebruikstelling van laerisikotegnieke en die veilige gebruik van osoon (Viebahn-Haensler, R., 2001:20).

Osoongenerators vervaardig osoon deur suurstofmolekule tot hoër energievlake aan te slaan.



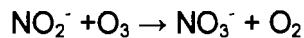
Die eerste stap in die vorming van O_3 is die elektronimpakdissosiasie van molekulêre O_2 en N_2 (Pekárek, S. et al. 2002: 225; Akhmedzhanov, R. A. et al. 1997: 266).



Tegelykertyd kan stikstofoksiede vorm en die konsentrasie van stikstofdioksied kan vlakke van 1 tot 4 dpm bereik. Langtermynblootstelling aan 0,05 tot 0,1 dpm NO_2 lei tot kroniese trageobrongitis as gevolg van beskadiging van die asemhalingsweë. Blootstelling aan konsentrasies hoër as 2,5 dpm NO_2 lei tot obstruksie van die lugweë (Wu, R. et al., 2003).

Stikstofoksiede vorm nitriete en nitrate in water:





Aangesien osoon mediese toepassings het, is die teenwoordigheid van nitriete ongewens weens die kankervormende nitrietverbindings wat kan vorm. Die maksimum toelaatbare nitriet- en nitraatvlakke in drinkwater is 0,2 en 50 mg/L onderskeidelik. Osoongenerators wat met lug bedryf word, moet dus so ontwerp word dat stikstofoksiedvorming beperk word.

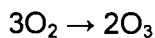
2.2 Die vervaardiging van osoon

Omdat die natuurlike konsentrasie van osoon in die lug te klein is om osoon vanuit die lug te herwin met lugskeidingsaanlegte, word osoon uit suurstof vervaardig deur middel van gasontladingsplasmas gevorm deur elektriese ontlading, fotochemiese reaksies, elektrolitiese en radiochemiese prosesse, en kombinasies van die prosesse. Plasmas is geïoniseerde gasse, bestaande uit elektrone, neutrale spesies, positiewe en negatiewe ione (Bogaerts, A. et al., 2002, 609-658).

2.2.1 Gasontladingsplasmas gevorm deur elektriese ontlading

Die vervaardiging van osoon berus op die vorming van 'n korona-ontlading tussen twee elektrodes waaroor 'n potensiaalverskil teen 'n sekere frekwensie aangelê en 'n suurstofbevattende gas deurgeblaas word.

Die vormingswarmte van osoon vanaf suurstof is 142,26 kJ/mol met 'n teoretiese maksimum opbrengs van 1220 g O₃/kWh (ANON, Ozone generation and application, 2005: 1).



Vir die grondtoestand van O₃ (X ¹A₁) = 1,48 eV/molekuul is die teoretiese opbrengs

$$1,48 \text{ eV/molekuul} = 0,83 \text{ kWh/kg O}_3 = 1200 \text{ g O}_3/\text{kWh}$$
 (Bai, M. et al., 2001: 111).

Huishoudelike en industriële osoongenerators produseer 70 – 250 g /kWh osoon (Gibalov, V. I. et al., 2000: 2633).

Modellering en simulasie van osoonsintese, asook die vervaardiging van osoon, is 'n komplekse probleem omdat fisiese en chemiese prosesse gelyktydig die opbrengs beïnvloed.

2.3 Osoonvorming in 'n elektriese veld

2.3.1 Osoonvervaardiging met suurstof as gas in osoongenerators

Om osoon te vervaardig moet molekulêre suurstof gedissosieer word. Die dissosiasie vind plaas gedurende die elektronfase van die ontlading, waar elektrone met energie van 6 – 10 eV die O_2 van die grond- na opgewekte toestand suurstofatome dissosieer. Elektrone met 'n energie van 6 eV dissosieer O_2 ($B\ ^3\Sigma_u^-$) na O (3P) + O (1D) (Eliasson, B. et al., 1984: L800). Die aantal elektrone met genoegsame energie bepaal dus die hoeveelheid atomiese suurstof. Die osoonsintese deur die reaksie van suurstofatome met suurstofmolekule neem ongeveer 100 μ s (Pekárek, S. et al., 2002: 222).

Teen lae osoonkonsentrasies met suurstof as toevloeggas sal alle atomiese suurstof na osoon omgeskakel word, dus bepaal die suurstofatomokonsentrasie die uiteindelike osoonkonsentrasie (Gibalov, V.I. et al., 2003: 439).

Volgens Bai, M. et al. (2001: 108) is die oorgang van die grondtoestand O_2 ($X\ ^3\Sigma_g^-$) na die opgewekte toestand O_2 ($A\ ^3\Sigma_u^+$) met energie 6,1 eV 'n verbode oorgang (die seleksiereël vir $\Sigma - \Sigma$ oorgange is dat ${}^+ - {}^-$ oorgange verbode is). Slegs wanneer die elektronenergie meer as 8,4 eV bereik, kan O_2 ($X\ ^3\Sigma_g^-$) na O (3P) en O (1D) gedissosieer word. Sien bylae 4.3.1 vir elektroniese notasie van aangeslange molekule en atome.

Dissosiasie vind plaas in die gebied van die ontlading waar die energie vrygestel word deur elektronbotsings. Die maksimum energieverbruik is by die anode, dus word die meeste suurstofatome in dié gebied gevorm. Daar word ook suurstofatome by die katode gevorm. Wanneer 'n gasstroom vanaf die anode na die katode vloeи, word daar ook by die katode 'n maksimum geskep. Suurstofdissosiasie vind ook effektief in die gasstroom plaas, maar as gevolg van die dimensie en tydsduur van die gasstroom in die katodegebied, lewer hierdie sone 'n klein bydrae tot die totale osoonopbrengs (Gibalov, V.I. et al., 2003: 439).

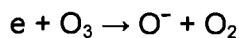
Volgens Pontiga, F. et al. (2002: 447) gebruik die mees volledige model vir die reaksies tydens osoonvorming in suurstof tien spesies naamlik: e , O_2^+ , O_2^- , O_3^- , O^- , O_2 , O_2 ($^1\Delta_g$), O_2 ($^1\Sigma_g^+$), O en O_3 en 79 reaksies. 'n Presiese kwantitatiewe voorspelling van osoongenerasie vereis die verfyning van die numeriese model en meer eksperimentele reaksietempo-konstantes van die chemiese kinetika van osoon. Die chemiese model is in verband gebring met die numeriese model deur middel van Poisson se vergelyking. Met dié parsiële differensiaalvergelyking, $\Delta\phi = F$ word die ruimtelike gemiddelde osoondigtheid bereken as 'n funksie van die stroomintensiteit en vergelyk met eksperimentele waardes wat met UV-spektrometrie verkry is.

Die belangrikste reaksies wat plaasvind tydens osoongenerasie deur middel van negatiewe korona-ontladingsmodelle met suiwer suurstof is volgens Pontiga, F. et al. (2002: 447 – 456) die volgende:

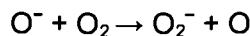
Positiewe ione word by die katode gevorm deur ionisasie van suurstof.



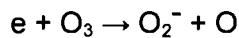
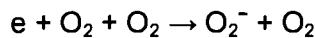
Negatiewe ione vul die ontladingsgebied. Negatiewe suurstofatoomione word deur dissosiatiewe elektronaanhegting aan molekulêre suurstof en osoon gevorm.



O_2^- word deur ladingsoordrag vanaf O^- gevorm

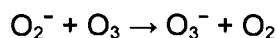
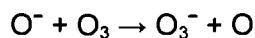


en in 'n mindere mate deur elektronaanhegting aan suurstofmolekule en dissosiatiewe elektronaanhegting aan osoon.



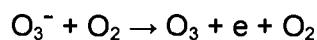
In die aktiewe sone (ontladingsgebied tussen die katode en anode) word die lading hoofsaaklik deur die elektrone vervoer as gevolg van hul hoë mobiliteit.

Osoonanione word deur ladingsoordrag vanaf O^- en O_2^- gevorm, nie deur elektronaanhegting aan osoon nie.

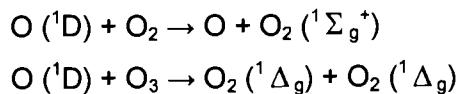


Die meganisme van O_3^- -vorming verklaar die drastiese vermindering van O^- en O_2^- in die negatiewe ladingsarea. Die vrye elektrondigtheid word indirek in die gebied verminder, omdat elektrone die bron van O^- en O_2^- is.

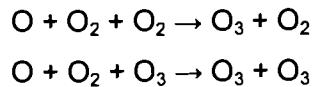
As die elektronlosmakingsreaksie in ag geneem word, is daar 'n vermindering in O_3^- - en vermeerdering in O^- en O_2^- -konsentrasie.



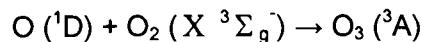
Die vormingstempo van neutrale spesies is direk en indirek afhanklik van elektrone. Die metastabile spesie $O_2 (^1\Sigma_g^+)$ verhoog die osoonkonsentrasie



deurdat die bykomende O en O_2 osoon vorm:

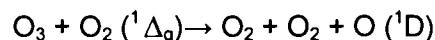


Volgens Dohan, J. M. et al. (1987: 318) vind die direkte reaksie tussen

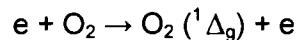


ook plaas in osoongenerators met korona-ontlading.

Osoon word egter afgebreek deur $O_2 (^1\Delta_g)$.



In die negatiewe ladingsgebied is die neutrale spesies nie in ewewig met die elektrone nie maar wel met osoon. Die hoë elektronkonsentrasie verminder die osoon in dié gebied deurdat die $O_2 (^1\Delta_g)$ -konsentrasie toeneem.



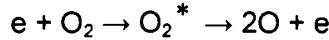
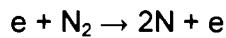
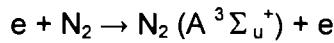
2.3.2 Osoonvervaardiging met lug as gas in osoongenerators

Stikstofmolekule word deur botsings met elektrone gedissosieer. Stikstofoksiede NO_x bestaande uit $NO + NO_2 + NO_3 + 2 (N_2O_4 + N_2O_5)$ en N_2O ontstaan as gevolg van suurstof en osoon se reaksies met opgewekte stikstofatome en molekule (Eliasson, B. et al., 1984: L797,799).

Die produksie van osoon in lug kan nie geskei word van produksie van stikstofoksiede nie as gevolg van die ooreenstemming van energievlake van elektrone wat nodig is om O_2 en N_2 op te wek.

- Soos genoem in afdeling 2.3.1 dissosieer elektrone met energie van 6,0 eV $O_2 (B ^3\Sigma_u^-)$ na $O (^3P) + O (^1D)$ (Eliasson, B. et al., 1984: L800).
- Elektrone met energie van 6,07 eV wek $N_2 (^1\Sigma_g^+)$ na $N_2 (A ^3\Sigma_u^+)$ op (Gaydon, A.G., 1953: 155).

Die eerste stap in die vorming van O_3 en NO_x is die aanslaning en elektronimpakdissosiasie van molekulêre O_2 en N_2 (Pekárek, S. et al., 2002: 225; Akhmedzhanov, R. A. et al., 1997: 266).



Om die hoeveelheid osoon geproduseer vanaf O_2 en N_2 te verklaar word die volgende twee aannames bykomend tot die standaardreaksies, deur Eliasson, B. et al. (1984: L799) gemaak:

- Die meeste opgewekte N_2 - ($B^3\Pi_g$) molekule dissosieer O_2 -molekule direk.
- Omtrent die helfte van die stikstofatome vanaf die elektronimpakdissosiasie van N_2 is in die opgewekte toestand $N(^2D)$.

Die belangrikste reaksies in osoonvorming in 21% O_2 /78% N_2 -lugmengsels en die relatiewe bydrae daarvan tot osoonvorming is die volgende:

Tabel 2.1 Die bydrae van O_2 en N_2 tot osoonvorming in lug relatief tot suwer suurstof

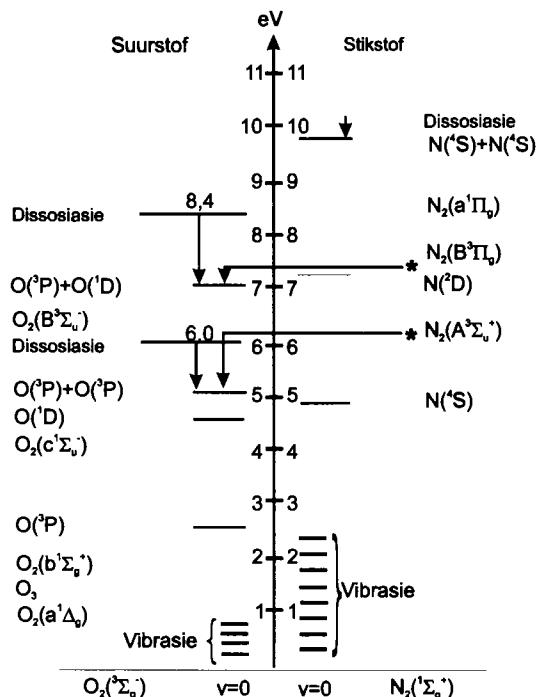
Reaksie	Bydrae tot osoonvorming in lug relatief tot suwer suurstof: (%)
$e + O_2 \rightarrow 2O + e$	21
$e + N_2 \rightarrow 2N + e$	8
$N + O_2 \rightarrow NO + O$	
$N + NO \rightarrow N_2 + O$	
$N_2(A^3\Sigma_u^+) + O_2 \rightarrow N_2 + O_2^* \rightarrow N_2 + 2O$	3
$N_2(A^3\Sigma_u^+) + O_2 \rightarrow N_2 + O_2^* \rightarrow N_2O + O$	
$N_2(A^3\Sigma_u^+) + O_2 \rightarrow N_2 + O_2^* \rightarrow N_2 + O_2$	
$N_2(B^3\Pi_g) + O_2 \rightarrow N_2 + O_2^* \rightarrow N_2 + O_2$	10
Totaal	42

Met suwer droë suurstof as toevoergas is die relatiewe osoonopbrengs vanaf O_2 100%. Die osoonopbrengs met droë lug (21% O_2 /78% N_2) is 42% en nie 21% soos verwag nie.

Die O_3 -opbrengs is nie direk eweredig aan slegs die O_2 -molfraksie nie, maar aan die O_2 - plus N_2 -molfraksies (Eliasson, B. et al., 1984: L797).

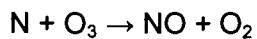
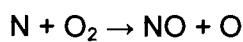
Hierdie berekeninge toon dat die helfte van osoon deur direkte elektronimpakdissosiasie van O_2 en die ander helfte van reaksies met N-atome of opgewekte N_2 -molekule afkomstig is.

Figuur 2.1 toon die potensiële energievlake van O_2 en N_2 in bogenoemde reaksies aan. Die * pyle toon die energiekoppeling tussen die A- en B-vlake van N_2 en die 8,4 eV en 6,0 eV dissosiatiewe vlake van O_3 .

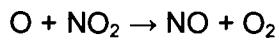
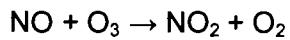


Figuur 2.1 Die potensiële energievlake van O_2 en N_2

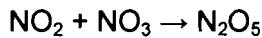
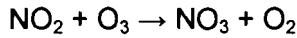
Die reaksie van atomiese stikstof met O_2 en O_3 vorm NO.



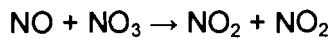
NO en NO_2 begin die afbreekciklus van osoon.



NO_2 word gebruik deur die volgende reaksies



en geregenereer deur die reaksies.

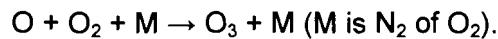


Die dissosiasiekoëffisiënt (sien bylae 4.3.2) van O₂- en N₂-elektronimpak hang af van die energieverbreiding van die elektrone in die ontlading. Die koëffisiënte word aangegee as 'n funksie van die verminderde elektriese veldsterkte (E V/cm) per eenheid gasdigtheid (n moleküle/cm³) (E/n). Die eenheid van E/n is Td: 1 townsend = 10⁻¹⁷ V cm² (sien bylae 4.3.2) (Kogelschatz, U., 2003: 8).

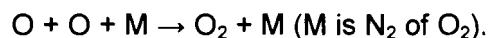
Pekarek, S. et al. (2002: 225) lig die invloed van verhoogde temperatuur op die katalitiese afbraakreaksie van osoon deur stikstofoksiede en die ontladingstroom as gevolg van stikstofaanslating wat die elektriese veldsterkte vir maksimum osoonproduksie halveer.

Kogelschatz, U. et al. (1987: 199) kon geen NO of NO₂ met IR-spektra in die teenwoordigheid van osoon vasstel nie, as gevolg van die vinnige reaksietempo van dié spesies met osoon. Indien die gasmengsel onmiddellik na die ontlading na 'n massaspektrometer gesuig word is die meting van NO of NO₂ wel moontlik.

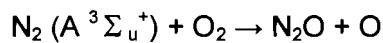
Die belangrikste osoonvormingsreaksie in osoongenerators met lugtoevoer by hoë druk is volgens Pekárek, S. et al. (2002: 225) die volgende:



Een van die reaksies wat die maksimum O-konsentrasie beïnvloed is



Byna alle stikstofatome (en die NO moleküle) word deur osoon na N₂O₅ geoksideer en 'n deel van die opgewekte stikstofmoleküle word na N₂O omgeskakel (Eliasson, B. et al., 1984: L797,799).



Die opbrengs van N₂O₅ en N₂O van 560 en 520 dpmv per kWh/kg lug onderskeidelik, is onafhanklik van die osoonkonsentrasie by die volgende parameters, naamlik 'n temperatuur

van 10 °C en druk van 2,7 bar (273,6 kPa). Die N₂O₅-konsentrasie is temperatuurafhanklik. N₂O (laggas) is 'n stabiele molekuul wat nie deur osoon aangeval word, met ander NO_x-spesies reageer, of deur temperatuurstyging tot 26 °C beïnvloed word nie (Kogelschatz, U. et al., 1987: 200,201,204).

Die konsentrasie van N₂O₅ en N₂O styg lineêr met toename in spesifieke energie tot die osoonkonsentrasie begin daal. In die vergiftigingsgebied in die afwesigheid van osoon verval N₂O₅ na NO en NO₂ en O₂.

2.4 Osoongenerators

Vervaardigers van osoongenerators het 'n groot aandeel in die vooruitgang van osoonvervaardiging, daarom het patentregte in die vroeë jare van osoonvervaardiging die beskikbaarheid van inligting beperk. Volgens Suarasan, I. et al. (2002: 208) het Werner von Siemens die eerste osoongenerasiesisteem deur middel van korona-ontlading in 1857 ontwikkel. Sedert die totstandkoming van joernale soos *Ozone: Science and Engineering* in 1979 is belangrike artikels ten opsigte van osoonvervaardiging en osoongeneratorontwerp gepubliseer. Volgens Loeb, B.L. (2002: 404) het Louboutin in 1984 veranderings aan osoongenerators voorgestel om die vorming van vonke te verminder.

2.4.1 Ontwerpspesifikasies van osoongenerators wat osoonproduksie beïnvloed

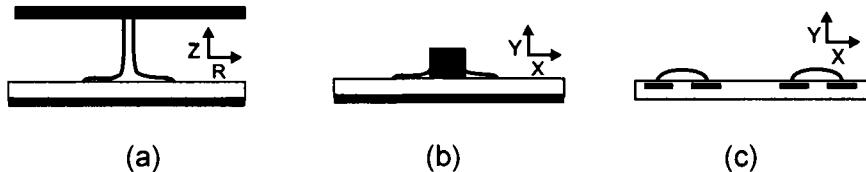
Die faktore wat 'n invloed het op osoonproduksie is interafhanklik en sterk gefokus op temperatuurbeheer. Elke faktor sal apart bespreek word, maar oorvleueling is onvermydelik as gevolg van die interafhanklikheid van die onderskeie faktore.

2.4.1.1 Tipes diëlektriese of stilontladings

Die volgende tipe diëlektriese of stilontlading vorm mikro-ontladingsfilamente, nanosekondes in tydsduur, oor die elektrodes.

- Volume-ontlading (a): voortplanting van die ontlading vind plaas in die volume tussen die elektrodes.
- Oppervlakontlading (b): voortplanting van die ontlading vind plaas tussen 'n elektrode op die diëlektriese laag en 'n elektrode aan die teenoorgestelde kant van die diëlektriese laag.
- Koplanêre ontlading (c): pare elektrodes word in die diëlektriese materiaal geplaas in kombinasie met volume- en oppervlakontlading (Haacke, M. et al., 2002: 194).

- Gemengde ontlading: voortplanting van die ontlading vind plaas in die volume tussen die elektrodes asook oor die oppervlak van die elektrodes.



Figuur 2.2 Tipes elektriese ontladings

Die krom lyne in figuur 2.2 a, b, en c stel die ontlading voor.

Die pyle stel die vlakke (x , y , z) waarin die ontlading plaasvind voor.

R duï op 'n sirkelvormige ontlading op die diëlektriese laag by die basis van die ontladingsfilament.

- Ultrakortpulsdiélektriese ontlading word onder 2.4.1.7 by hoëspanningspulse bespreek.
 - Pulsgelykstroomontlading sonder diélektriese materiaal is soortgelyk aan bogenoemde ontlading.

Korona- of stilontlading by atmosferiese druk, met diëlektriese versperring tussen die elektrodes vind plaas met verskillende opstellings naamlik multinaald-tot-plaat-elektrodes, enkel holnaald-tot-plaat-elektrodes, twee koaksiale elektrodes, twee elektrodes waarvan die een reghoekig in die gasstroom geplaas word, multikorona-ontlading met 'n sif en dubbelontlading deur middel van snellerelektrodes.

Tabel 2.2 bevat eienskappe van mikro-ontladings in lug vir 'n 1 mm ontladingsgaping teen 'n druk van 1 bar (101,325 kPa) (Xu, X., 2001: 239; Kogelschatz, U. et al., 1997:49).

Tabel 2.2 Eienskappe van mikro-ontladings in lug

Tydsuur	1-10 ns	Elektrondigtheid	$10^{14} - 10^{15}/\text{cm}^3$
Filamentradius	100 μm	Elektronenergie	$1-10 \text{ eV}$ ($1\text{eV} = 1,6 \times 10^{-19} \text{ J}$)
Stroommaksimum	0,1 A	Gastemperatuur	300 K
Stroomdigtheid	$100-1000 \text{ A/cm}^2$	Energiedigtheid	$1-10 \text{ mJ/cm}^3$
Totale lading	0,1-1 nC	Verlore energie	1 μJ

2.4.1.2 Diëlektriese materiaal

Elektrodes van osoongenerators word gewoonlik nie slegs deur 'n luggaping geskei nie, maar met 'n niegeleier, die diëlektriese materiaal van mekaar geïsoleer.

Die terugkorona-effek is die verhoging van die ontladingstroom vir dieselfde toegepaste potensiaal as gevolg van die neerslag van stofpartikels van verskillende groottes, vorms en voginhoud op die elektrodes.

Die terugkorona-effek het 'n negatiewe invloed op die effektiwiteit van elektrostatiese presipiteerders, maar verhoog osoonproduksie deur vermindering van die vonkpotensiaal. Hierdie newe-effek is in 1958 deur Penney, G. W. en Hewitt, J. G. opgemerk.

Penney, G. W. et al. het volgens Peyroux, R. (2004: 11) in hulle ondersoek na elektrostatiese presipitering van as die effek nageboots deur die aanbring van 'n dun laag van 0,8 mm poreuse diëlektriese materiaal naamlik as, op die elektrodes. Die terugkorona-effek word ook beïnvloed deur die aard, dikte, weerstand en poreusheid van die diëlektriese materiaal en die posisie van die diëlektriese materiaal (elektrode geheel of gedeeltelik bedek) op die aktiewe of passiewe elektrode.

Die diëlektriese versperring van die osoongenerator is die "hart" van die korona-ontladingsysteem en vervul drie belangrike rolle, naamlik:

- Die beperking van die hoeveelheid energie en lading in elke mikro-ontlading. (Met ander woorde vonkvorming tussen die elektrodes word voorkom.)
- Die verspreiding van die mikro-ontladings oor die hele elektrodegebied.

- Skeiding van die elektrodes as gevolg van die isolerende aard van die materiaal (Alonso, J. M. et al., 2003: 365).

Die lading oorgedra in die mikro-ontlading (die opeenhoping van lading op die diëlektriese materiaal) het 'n belangrike invloed op die eienskappe van die diëlektriese ontlading.

2.4.1.2.1 Eienskappe van die diëlektriese laag wat 'n invloed het op osoonproduksie

- Dikte

Volgens Gibalov, V.I. et al. (2003: 443) lei dunner diëlektriese lae tot toename in kapasitansie en energiedigtheid (kW/m^2) per elektrode-area en kleiner afstande tussen elektrodes. Kompakter osoongenerators kan dus gebou word. Volgens Peyroux, R. (2004: 14) bestaan daar egter 'n optimum dikte vir die poreuse diëlektriese materiaal. Die spanning waarby die korona ontstaan, is onafhanklik van die dikte, in die 0,09 tot 0,24 mm gebied, van die diëlektriese materiaal as die weerstand tussen 10^{11} en $10^{12} \Omega/\text{cm}$ is.

Jodzis, S., (2003: 63) het die hele ontladingsgaping met silikagel, 0,5 tot 0,8 mm deursnit, $357 \text{ m}^2/\text{g}$ BET oppervlakte gevul en die osoonopbrengs van die osoongenerator met 20 tot 40% verhoog. Die verhoging word daaraan toegeskryf dat deelnemende molekule en atome deur adsorpsie aan die silika-oppervlak (molekuul M van die reaksie $\text{O}_3^* + \text{M} \rightarrow \text{O}_3 + \text{M}$) gestabiliseer word.

- Weerstand

Die kritiese weerstand is tussen 10^{11} en $10^{12} \Omega/\text{cm}$ waarbo vonkontlading plaasvind. Die weerstand van die diëlektriese materiaal word beïnvloed deur humiditeit, maar volgens Peyroux, R. (2004: 13) het Pauthenier, M.L. et al. gevind dat humiditeit geen invloed op die weerstand van nylonmateriaal het nie.

- Aard van die diëlektriese materiaal

Die geleiding oor die oppervlak van die diëlektriese materiaal is afhanklik van die chemiese samestelling daarvan asook die samestelling van die deurvloeigas. Nylonmateriaal het 'n hoë reaktiwiteit met osoon, suurstof en UV-straling van die ontlading. Dié reaktiwiteit verhoog omdat die temperatuur van ongeveer 60°C in die generator naby die glasoorgangstemperatuur ($70 - 80^\circ\text{C}$) van nylon is. Nylon is dus nie geskik as diëlektriese materiaal in 'n draad-tot-silinder-osoongenerator nie, omdat 'n groot deel van die atomiese suurstof en osoon met nylon reageer. Die volgende tipes diëlektriese materiaal, in volgorde van afnemende osoonopbrengs kan op die elektrode aangebring word: dun lae

borosilikaatglas, polietileentereftalaat (PET), Teflon® (PTFE) poreuse lae, glasveselmateriaal, of keramiek (Al_2O_3 : alumina). Almal lewer 'n hoër osoonopbrengs as Nylon® (Peyroux, R., 2004: 18,19).

Haverkamp, R. G. et al. (2002: 322) gebruik 'n mika-silikonsamestelling met 'n dikte van 0,25 mm, terwyl Kaneda, S. et al. (2004: 569) ondersoek ingestel het na die invloed van die wydte van die rubberlaag op die anode op die osoonopbrengs. Daar is gevind dat die osoonopbrengs hoër is wanneer die elektrode slegs gedeeltelik bedek word deur die diëlektriese materiaal.

- Pulsstroomontlading sonder diëlektriese materiaal

Pulsstroomontlading vind plaas tussen twee elektrodes sonder 'n diëlektriese laag en selfterminering van die puls vind nie plaas nie. Die toegepaste spanningspulse beheer die gedrag van die plasma, die vorming van ontladingsstrome, energie-oordrag en gevoglik ook osoonvorming tussen die vorming en terminering van die puls. Volgens Ma, H. (2003: 128) is daar nog nie modelle vir die vorming van osoon in pulsstroomplasma nie. Om te voorkom dat ontladingsvonke al die gevormde osoon vernietig, moes die pulsamplitude minder as 34 kV wees (Ma, H., Qiu, Y., 2003: 128).

2.4.1.3 Vervaardigingsmateriaal van die osoongenerator

Vlekvrye staal as binne-oppervlak van die ontladingsruimte is uitstekend bestand teen osoon. Die effektiewe leeftyd van osoon in die ontladingsruimte neem af met vlekvrye staal, koper en aluminium as binnewandbedekkings (Itoh, H. et al., 2001: 82). Daar is aluminium in die nylon diëlektriese laag binne die aluminiumsilinder van 'n draad-tot-silinder-osoongenerator gevind wat dui op die reaktiwiteit van aluminium met die diëlektriese laag (Peyroux, R., 2004: 18).

Die aluminiumomhulsel van Sterizone© is geanodiseer om die binne- en buite-oppervlak van die omhulsel elektries te isoleer en te beskerm teen korrosie (Visser, B., 2002: 5). Anodisering is die elektrochemiese aanbring van 'n oksiedlaag, Al_2O_3 , op die aluminium.

Lae osoonkonsentrasies is by die aluminiumbinnewand, die een elektrode, van die osoongenerator van Motret, O. et al. (2002: 211) gemeet, en word daaraan toegeskryf dat 'n deel van die suurstofatome op die wand rekombineer. Die rekombinasieproses word beïnvloed deur die tipe binnewandbedekking, soos bo genoem, asook die oppervlaktekstuur en temperatuur. Die binnewand tree op as katalisator (M) in die reaksie



Wanneer die toevoergas minder as 4% N₂ bevat, vorm die stikstofoksiede 'n laag op die oppervlak en inhibeer osoonontbinding. Die stikstofoksiede vorm sodoende 'n stabiele oppervlak vir osoongenerasie (Murata, T., 2001: 52).

2.4.1.4 Materiaal van die elektrodes

Aluminium, titaan, wolfram en vlekvrye staal word algemeen gebruik. Silwerpasta as elektrode is deur Choi, J.H. (2004:199) gebruik met Al₂O₃ as diëlektriese laag.

2.4.1.5 Die fisiese dimensies van die aanslaningsruimte

Die dimensie van die aanslaningsruimte bepaal die dimensie van die gasstroom.

Een van die hooftendense in die ontwikkeling van osoongenerators is die verkleining van die ontladingsgaping. Die gaping kan egter net in 'n beperkte mate verklein word as gevolg van tegnologiese probleme met betrekking tot die akkuraatheid van die gaping.

2.4.1.5.1 Plasing van die elektrodes

In die geval van diëlektrieseontlading is osoongenerator-effektiwiteit afhanklik van die spasie tussen die elektrodes. Hoe nader die elektrodes aan mekaar is, hoe meer intens is die ontlading. 'n Hoër energiedigtheid word in die ontladingsruimte verkry en lei sodoende tot verhitting van die ruimte. Om effektiwiteit te verbeter moet die ontlading oor die ontladingsruimte homogeen wees.

'n Nuwe benadering om die beperking van die gapinggrootte te bowe te kom, is met koplanêre ontladingsrangskikkings (KO). Pare elektrode word in die diëlektriese materiaal geplaas. Elektrode-afstande is in die orde van 100 µm en word met groot akkuraatheid met behulp van mikro-elektroniese tegnologie geïnstalleer (Gibalov, V.I. et al., 2003: 431).

Koaksiale plasing van die twee elektrodes lewer swakker osoonopbrengs (2 g/kWh) as met die plasing van twee elektrodes aan weerskante van 'n plat borosilikaatglasplaat (125 g/kWh).

Die elektrodes is in beide bogenoemde gevalle vlekvryestaalfoelie en vlekvrye staal (Alonso, J. M. et al., 2003: 374,375).

Haverkamp, R. G. (2002: 327) plaas 'n bykomende titaansifelektrode tussen die twee aluminiumelektrodes van die Novozonesel om die ontlading te vergroot. Hierdie sifelektrode kan as 'n diëlektriese laag beskou word as gevolg van die effek daarvan op die ontlading. Dunne siwwe (1,34 mm) verhoog osoonproduksie omdat dit die ontladingsvolume vergroot,

die hoeveelheid gas wat die ontlading ontsnap, verminder, die energie oor 'n groter oppervlak versprei en gelokaliseerde temperatuurstyging beperk.

Kleiner spasiëring van sifopeninge verbruik meer energie by dieselfde spanning as groter openinge. Hierdie effek kan gebruik word om die generatorspanning te verlaag of om die frekwensie te verlaag sonder om die kragbronontwerp te verander.

2.4.1.6 Elektrodespanning

Wissel- of gelykstroomspanning word toegepas in osoongenerators.

- Wisselstroom ontlading met diëlektriese versperring bestaan uit mikro-ontladingsfilamente nanosekondes in tydsuur, dit wil sê talle stroompulse per halfsiklus vind plaas. Die aantal mikro-ontladings is eweredig aan die amplitude van die spanning en die dimensie van die ontladingsruimte. Toevoerspanning kan enige waarde tussen 140 en 1200 V wees.
- Gelykstroom ontlading vind plaas wanneer 'n konstante potensiaalverskil toegepas word tussen die katode en anode. 'n Aaneenlopende stroom vloeи deur die ontlading. Elektrone word uitgestraal deur die katode, versnel deur die elektriese veld voor die katode en bots met gasmolekule en -atome.

2.4.1.6.1 Hoëspanningspulse

'n Puls ontstaan wanneer die plasma wat in die ontlading gevorm word homself vernietig as die opbou van lading op die diëlektriese laag die elektriese veld verlaag. Die stroomvloeи stop dan op dié punt (Alonso, J. M. et al., 2003: 365).

Wanneer die spanning in die vorm van pulse met lengtes van ms - μ s toegepas word, kan die ontlading by hoë piekspanning (3 - 8 kV) en -stroom vir dieselfde kragtoevoer plaasvind. Lae gemiddelde kragvoorsiening voorkom oorverhitting en skade geassosieer met gelykstroomontladings. In die plasma wat deur die pulse gevorm word, het die elektrone hoë energie as die ione en neutrale spesies. Ionisasie en rekombinasie in die plasma vind op verskillende tydskale naamlik aan teenoor af tye, plaas. Die voordeel hiervan is verhoogde effektiwiteit van osoonproduksie (Bogaerts, A. et al., 2002: 615, 617).

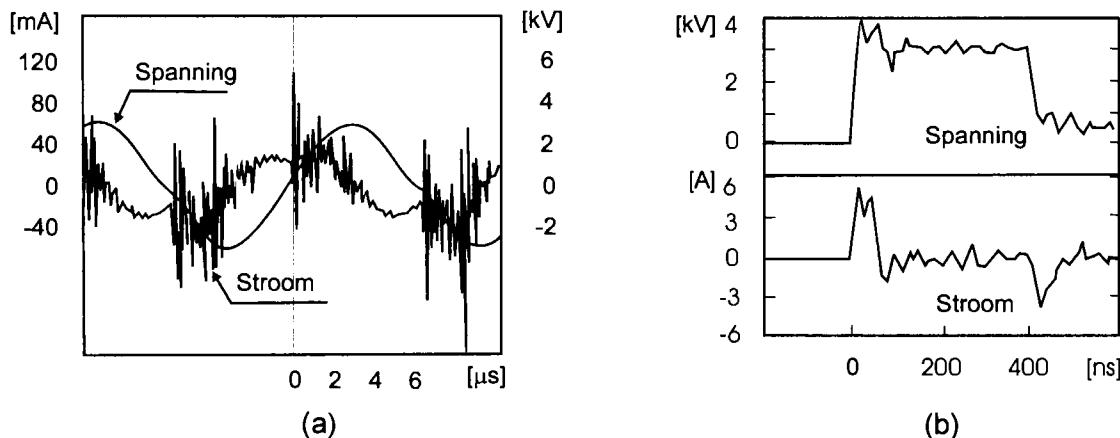
Die verkleining van die aanslaningsgaping verkort die pulswydte. Laasgenoemde is die tydsuur van die ontladingspuls (Gibalov, V.I. et al., 2003: 442).

Met konvensionele diëlektriese ontlading, waar wisselstroomhoëspanning gebruik word, is daar 'n betreklik lae oombliklike energietoevoer. Slegs verspreide naaldvormige strome op

die sinusgolfvorm soos geïllustreer in figuur 2.3 (a) kan die gas binnedring. Blokvormige hoëspanningspulse veroorsaak egter 'n hoë oombliklike energietoevoer met gepaardgaande groot strome gekonsentreer op die skerp spanningstyging en -daling. Laasgenoemde voordeel word meer dominant wanneer hoëfrekwensie-ultrakortpulse soos in figuur 2.3 (b) gebruik word.

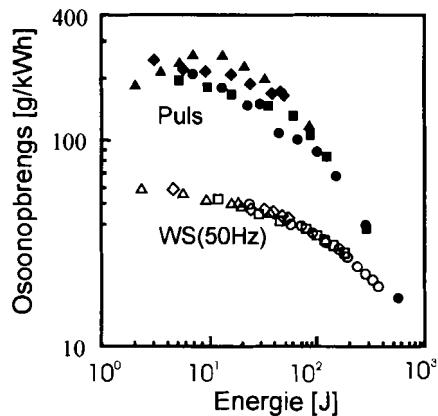
Voordele van die hoë oombliklike energietoevoer is:

- Die vorming van elektrone met hoër energie en groter effektiwiteit.
- Die minimalisering van jouleverlies wat temperatuurstyging in die ontlading beperk.
- Die generator word teen hoër piekspanning en -stroom bedryf vir dieselfde gemiddelde kragtoevoer as in 'n gelykstroomontlading.



Figuur 2.3 Spanning- en stroomgolfvorm: (a) Sinusgolwe by 80 kHz (b) Ultrakort blokvormige hoëspanningspulse

Osoonproduksie van 250 g/kWh met droë suiwer suurstof is moontlik omdat meer suurstofatome vorm en die gevormde osoon nie afbreek as gevolg van temperatuurstygings nie (Okazaki, K. et al., 2002: 447, 448).



Figuur 2.4 Die vermeerdering van osoonproduksie met blokvormige hoëspanningspulse

Ultrakort hoëspanningspulse verbeter ook die osoonproduksie deur 'n steil spanningsfront van ongeveer 10^{12} V/s wat binne nanosekondes lei tot die ontladingsspanning van 3 - 8 kV (Motret, O. et al., 2002: 208; Visser, B., 2002: 11,12).

2.4.1.6.2 Frekwensie

Die frekwensie van die spanningspuls dui op die herhaaltyd van die puls. Elke puls het 'n pulswydte wat eie is aan die osoongenerator. As dieselfde puls gehandhaaf word, kan die gemiddelde energie-uitset verhoog word deur die pulsfrekwensie te verhoog.

Volgens Alonso, J. M. et al. (2003: 363) is die osoonproduksie van osoongenerators met elektriese modelle met lae frekwensies (1 – 1000 Hz) laer as die osoongenerators toegerus met hoëfrekwensie-omskakelaars (15 – 20 kHz).

Haverkamp, R. G. et al. (2002: 325) toon dat daar 'n optimum frekwensie van 19 kHz is. Frekwensies van 300Hz – 3kHz het geen effek op osoonproduksie nie en osoonproduksie neem af met frekwensies groter as 19 kHz.

Die nadele om by lae frekwensies tot 19 kHz te werk is meervoudig. Die osoongeneratorgeras word hoorbaar en irriterend, die spanning moet verhoog word om dieselfde kragtoevoer te handhaaf, meer isolasie word benodig en verhoog die vervaardigingsprys van die kragtoevoereenheid.

Die rede waarom meer osoon gevorm word met toenemende frekwensie is dat die gemiddelde aantal elektrone en ione in die ontladingsruimte toeneem as gevolg van die korter herhaaltyd van die puls.

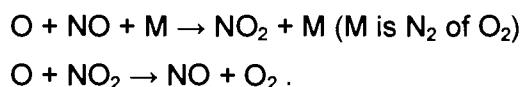
As die frekwensie van die osoongenerator verhoog terwyl die spanning konstant gehou word, sal die krag toeneem en gevolglik ook die temperatuur. Die gevolg is "vergiftiging" wat lei tot die afbreek van die gevormde osoon soos in afdeling 2.4.1.6.3 beskryf.

Vir 'n ondersoek by konstante gemiddelde energie moet die spanning verlaag word as die frekwensie verhoog word. By konstante gemiddelde energie word 'n verlaging van N₂O en N₂O₅-konsentrasies waargeneem by toenemende frekwensie vanaf 50 tot 1500 Hz (Kogelschatz, U., 1987: 201).

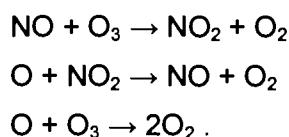
2.4.1.6.3 Kragtoevoer

'n Toename in die spesifieke energie lei tot 'n toename in osoonkonsentrasie en uiteindelik tot "vergiftiging" waar die osoon verval en die osoonkonsentrasie na nul daal. Spesifieke energie is die energie versprei in die ontladingsarea per kg lug wat daardeur vloeи en die eenheid is kWh/kg lug.

Die botsingstempo van osoon met elektrone verhoog met verhoogde kragtoevoer. Die verhouding osoonverlies deur botsings is eweredig aan beide die ontladingstroom en osoonkonsentrasie, daarom sal hoér kragtoevoer lei tot groter osoonverlies deur botsings. Die "vergiftiging" vind ook plaas wanneer die massavloei afneem. 'n Katalitiese rekombinasieproses vind plaas wat vinniger is as osoonvorming vanaf suurstofatome



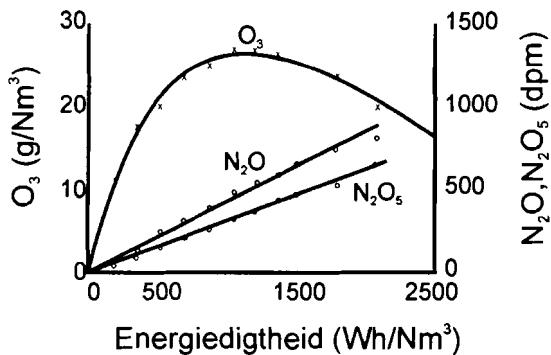
Alle vorige geproduseerde osoon word ook vernietig (Kogelschatz, U., 1987: 203)



Bogenoemde vermindering in osoonkonsentrasie is meer prominent by osoongenerators met lugtoevoer omdat die fraksie suurstofatome wat aan die reaksie O + O₂ + M → O₃ + M deelneem, afneem met toename in temperatuur. Stikstofoksiede (NO, NO₂, NO₃, N₂O₅, N₂O) ontstaan as gevolg van suurstof se reaksie met opgewekte stikstofatome en molekule. Byna alle stikstofatome word na N₂O₅ geoksideer en 'n deel van die opgewekte stikstofmolekule word na N₂O omgeskakel (Kogelschatz, U., 1987: 204).

Hierdie produkte beïnvloed die osoonproduksie omdat die konsentrasie van N₂O₅ en N₂O nie temperatuurafhanklik is nie (ANON, Ozone generation and application, 2005: 11).

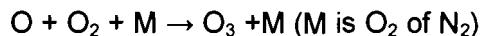
Figuur 2.5 toon die N_2O -, N_2O_5 - en O_3 -opbrengs in osoongenerators bereken met behulp van Poisson se vergelyking (Braun, D. et al., 1990: 258, 262).



Figuur 2.5 N_2O , N_2O_5 - en O_3 -opbrengs in osoongenerators

2.4.1.7 Gasdruk

Die gasdruk by die meerderheid diëlektriese osoongenerators is atmosferiese druk. Die toepassing van atmosferiese druk sonder oorverhitting van die katode en vonkvorming is moontlik omdat die ontladingsruimte verklein word (Bogaerts, A. et al., 2002, 615). Die reaksietempo-afhanklikheid van die belangrikste osoonvormingsreaksie

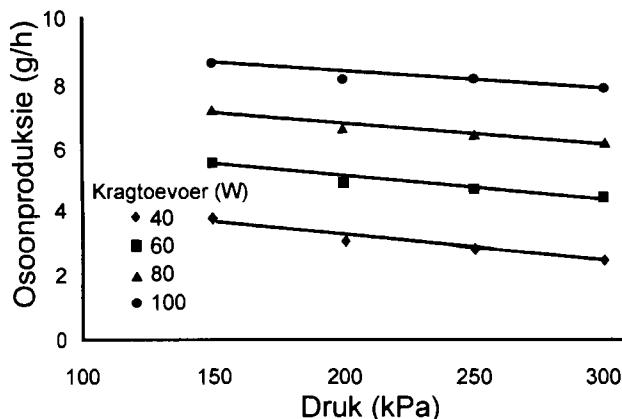


wanneer ontlading in lug by hoë druk plaasvind, is

$$k = 2,5 \times 10^{-35} e^{970/T_g} \text{ cm}^6/\text{s}.$$

Dit wil sê osoonproduksie neem af met toenemende temperatuur, T_g (Pekárek, S. et al., 2002: 225).

Haverkamp, R. G. et al. (2002: 324) bevestig hierdie bevinding eksperimenteel en vind dat 'n verdubbeling in druk van 150 na 300 atm tot 'n afname van 20% in osoonproduksie lei. Die druktoename veroorsaak 'n langer residensietyd van die gevormde osoon in die ontladingsruimte en meer osoon word dan vernietig.



Figuur 2.6 Die effek van druk op osoonproduksie

(4 slm, 32 kHz)

Volgens Kogelschatz, U. et al. (1987: 200) styg die N_2O -konsentrasie met afnemende druk, terwyl die N_2O_5 -konsentrasie onafhanklik is van druk.

2.4.1.8 Polariteit van die korona

Koronas kan positief of negatief wees en word bepaal deur die polariteit van die spanning op die elektrode. Positiewe koronas vorm in die omgewing van die positiewe anode en bevat 'n oormaat kationiese spesies terwyl 'n negatiewe korona 'n oorskot elektrone en anioniese spesies in die omgewing van die negatiewe katode vorm.

In die positiewe korona word osoon en stikstofoksiede homogeen oor die hele ontladingsgebied gevorm. In verhouding met suurstofatome word ongeveer vyf keer meer stikstofatome met positiewe polariteit as met negatiewe polariteit gevorm. Daar is ongeveer een NO^- , N_2O^- , en N_2O_5 -molekuul vir elke 100 O_3 -molekule by positiewe polariteit (Pietsch, G. J. et al., 2005: 4; Kogelschatz, U. et al., 1987: 204).

In die negatiewe korona word osoon en stikstofoksiede hoofsaaklik in die katodegebied gevorm. Daar is ongeveer een stikstofoksiedmolekuul vir elke 400 O_3 molekule by negatiewe polariteit (Pietsch, G. J. et al., 2005: 4).

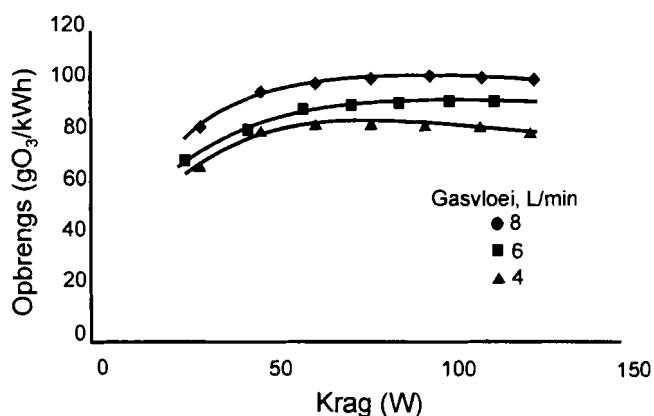
Die osoonproduksie met oppervlakontlading is volgens Pietsch, G. J. et al. (2005: 1-5) dieselfde by positiewe en negatiewe polariteit.

Osoonproduksie met positiewe ontlading is minder as met negatiewe ontlading in die volgende twee gevalle. Ontlading rondom 'n koperdraadelektrode en naald-tot-plaatontlading. Die bevinding van Castle, G. S. P. et al. (1969: 492) stem ooreen met dié van Pekárek, S. et al. (2002: 223).

2.4.1.9 Gasvloei en stroomsterkte

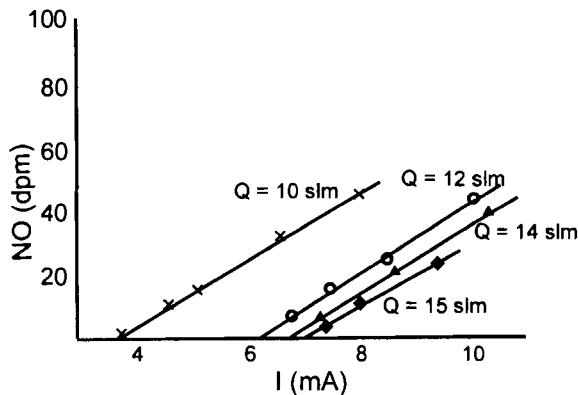
Die gasvloei is gewoonlik laag en die stroomsterkte hoog om hoë osoonkonsentrasies in klein ontladingsruimtes te verkry. Hoë temperatuur in die ontladingsruimte as gevolg van lae gasvloei en hoë stroomsterkte bevoordeel die vorming van stikstofoksied en lei tot die vergiftigseffek. Hoër gasvloei deur ontladingsopeninge met klein (100 μm) sowel as groot (20cm) deursnitte het 'n verkoelingseffek op die korona en die osoongenerator.

Haverkamp, R. G. et al. (2002: 323) vind 'n toename van 20% in osoonproduksie (van 80 tot 100 g/kWh) met toenemende gasvloei (4 – 8 slm) in figuur 2.7. Dié toename word daaraan toegeskryf dat afname in tyd wat die gas in die ontladingsruimte spandeer die gevormde osoon minder kans gee om in die ontlading te reageer en vernietig te word.

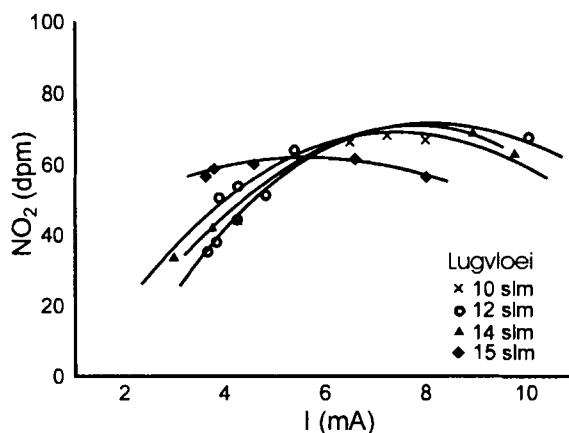


**Figuur 2.7 Die effek van gasvloei en kraguitset op osoonproduksie
(150 kPa, 32 kHz)**

Die stikstofoksiedkonsentrasie neem toe met gasvloei en neem ook lineêr toe met stroomsterkte soos aangedui in figuur 2.8 en die NO₂-konsentrasie bereik 'n maksimum met toenemende gasvloei vir 'n gegewe stroom soos aangedui in figuur 2.9.

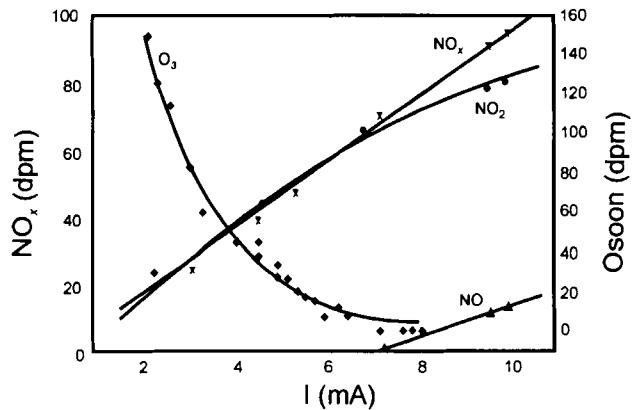


Figuur 2.8 Die invloed van lugvloei en stroomsterkte op NO-konsentrasie (naald positief)



Figuur 2.9 Die invloed van ontladingstroom op NO₂-konsentrasie by wisselende lugvloei (naald positief)

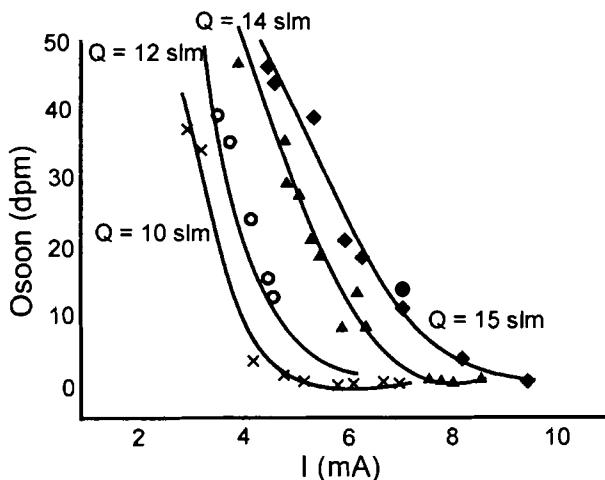
Met konstante gasvloei van 14 slm en toenemende stroom neem die osoonkonsentrasie af tot nul en die NO_x-konsentrasie neem toe soos aangedui in figuur 2.10. Die omgewingslug is met behulp van 'n kompressor deur 'n holnaald ($\varnothing = 0,7$ mm) gevoer (Pekárek, S. et al., 2002: 224).



Figuur 2.10 Osoon- en NO_x-konsentrasie teenoor stroom

(naald negatief, gasvloei 14 slm)

Volgens Pekárek, S. et al. (2002: 224) neem die osoonkonsentrasie (dpm O₃) toe met toenemende gasvloei (Q) van 10 – 15 slm (standaard liter per minuut, dit wil sê liter by 1 atm) vir 'n gegewe stroom van 3 – 10 mA soos aangedui in figuur 2.11.



Figuur 2.11 Die invloed van lugvloei op osoonkonsentrasie

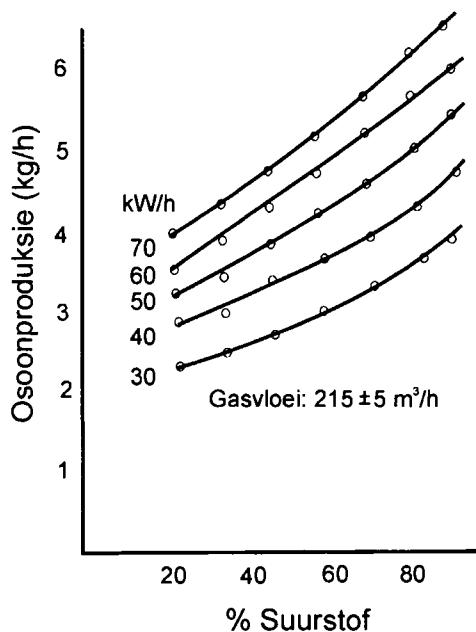
(naald negatief)

Uit bostaande gegewens is dit duidelik dat die produksie van osoon en stikstofoksiede op 'n komplekse wyse van die vloeitempo en die stroomsterkte afhanglik is. Vloeitempo en stroomsterkte moet volgens behoefté, naamlik vir 'n hoë osoonkonsentrasie, 'n groot osoonproduksietempo of 'n optimale energiebenutting gekies word.

2.4.1.10 Tipe en samestelling van die deurvloeigas

2.4.1.10.1 Suurstof

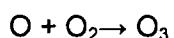
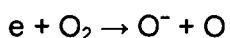
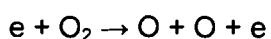
Volgens ANON, Lenntech ozone generation (2005: 4) gee droë suiwer suurstof die hoogste osoonopbrengs, daarna volg suurstofbevattende gasmengsels. Lug wat as gas in osoongenerators gebruik word, bestaan uit 78% N₂ en 21% O₂.



Figuur 2.12 Die invloed van die % suurstof in gasmengsels op osoonproduksie

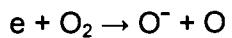
2.4.1.10.2 Stikstof

Vrye elektrone speel 'n belangrike rol in die vorming van osoon. Wanneer N₂ teenwoordig is in die suurstoftoevoergas verhoog die vrye elektrondigtheid in die ontladingsgebied en lei aanvanklik tot 'n verhoging in die vorming van suurstofatome en osoon. 'n Eksperimenteel waargenome toename van die ontladingstroom as gevolg van die teenwoordigheid van N₂ in die suurstoftoevoergas bevestig die verhoging in vrye elektrondigtheid.

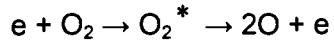
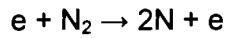
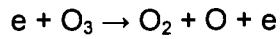


Wanneer die stikstofkomponent van die suurstof-stikstofgasmengsel toeneem, word die afname in osoonproduksie toegeskryf aan die vermindering van die

molekulêresuurstofkomponent en die verhoging in vrye elektrondigtheid (Skalny, J. D. et al., 2002: 34).



In bogenoemde reaksies vind dissosiatiewe aanhegting van elektrone aan O_3 plaas (Skalny, J. D. et al., 2002: 33).



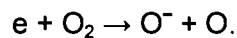
Manning, T. J. (2002: 53-64) het volgens Haverkamp, R. G. et al. (2002: 322) die invloed van inerte gasse as katalisatore ondersoek. Daar is gevind dat die teenwoordigheid van klein hoeveelhede stikstof in die suurstoftoevoergas, by lae kragtoevoer, die osoonproduksie verbeter. Bevindinge deur Eliasson, B. et al. (1984: L799) en Murata, T. (2001: 52) verklaar laasgenoemde waarneming. Wanneer die toevoergas $\leq 4\%$ N_2 bevat, vorm die stikstofoksiede 'n laag op die oppervlak van die diëlektriese laag en inhibeer osoonontbinding (Murata, T., 2001: 52).

Volgens Skalny, J. D. et al. (2002: 31) is die effek van Ar en N_2 (as onsuiwerheid in suurstof) op die osoonproduksie, dieselfde. Die maksimum osoonkonsentrasie verminder geleidelik namate die Ar- of $N_2\text{-}\%$ in die suurstof toeneem.

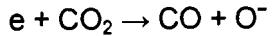
2.4.1.10.3 Koolstofdioksied

Kinetiese modelle en eksperimentele data in verband met die ontbinding van O_2^- en CO_2^- - molekule in korona-ontlading is met mekaar vergelyk deur Matejčík, S. (2001: 341, 342). Die volgende twee kompeterende elektronimpak-dissosiasieprosesse is aktief in die ionisasiegebied. Net elektrone in die ionisasiegebied het genoeg energie om die O_2^- en CO_2^- - molekule te dissosieer. 'n Eksperimenteel waargenome toename van die ontladingstroom as gevolg van die teenwoordigheid van CO_2 in die suurstoftoevoergas bevestig die verhoging in vrye elektrondigtheid en die aanvanklike verhoging in osoonproduksie.

In die teenwoordigheid van suurstof verlaag die vrye elektrondigtheid as gevolg van die reaksie

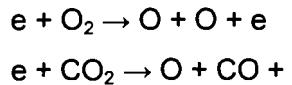


Die soortgelyke reaksie met koolsuurgas



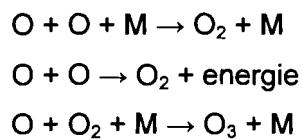
vind teen 'n stadiger tempo as met suurstof plaas.

As gevolg van die volgende twee elektrondissosiasieprosesse wat ook aktief is in O_2/CO_2 -mengsels is die osoonproduksie hoër in dié mengsels as in O_2/N_2 -mengsels (Skalny, J. D. et al., 2002: 35).



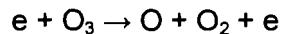
'n Toename in CO_2 -konsentrasie in die O_2/CO_2 -mengsel lei tot 'n afname in die O_3 -produksie.

By lae suurstofkonsentrasies of suiwer CO_2 is die assosiatiewe reaksies

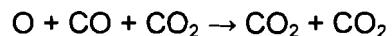


aktief en 'n O_3 -opbrengs van 0,01-5% word met suiwer CO_2 as toevoergas verkry (Skalny, J. D. et al., 2002: 35).

Die dissosiasie van osoon deur elektronimpak



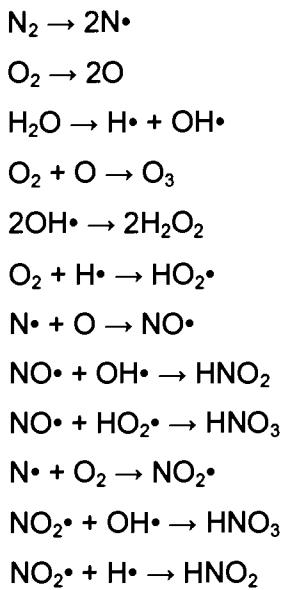
en die drie-deeltjie-assosiasiereaksie vir die vorming van CO_2 is ook in ag geneem vir die kinetiese model van Matejčík, S. (2001: 341, 342).



Berekening van die elektronkonsentrasie deur middel van kinetiese modelle en eksperimentele data stem ooreen. Die elektronkonsentrasie (n_e) neem af van $1 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ in die ionisasiegebied na 'n gemiddeld van $1 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ oor die hele ontladingsgebied.

2.4.1.10.4 Humiditeit

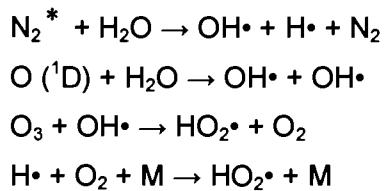
Die dissosiasie-energie van water is 5,1 eV sodat in korona-ontladings waar osoon kan vorm watermolekule ook kan dissosieer. (Ruscic, B., 2002: 2727 - 2747). Die resultate van Pinart, J. et al. (1996: 131-132) ondersteun die volgende reaksieskema waarvolgens HNO_2 (salpetrigsuur) en HNO_3 (salpetersuur) deur middel van 'n radikaalmeganisme vorm:



Groter hoeveelhede nitrate as nitriete vorm, wat daarop dui dat die HNO_3 -vormende reaksies vinniger plaasvind as dié van HNO_2 . Nitrietione word in die teenwoordighied van oksiderende spesies soos osoon binne 3-4 sekondes na nitraatione geoksideer (Reed, R. et al., 2001:379).

Daar is 'n lineêre korrelasie tussen die som van die NO_2^- - en NO_3^- -konsentrasies en pH, asook tussen NO_2^- - en NO_3^- -produksie en tyd, stroomintensiteit en hoeveelheid elektrisiteit geproduseer deur die korona. As osoon gegeneer word onder nat toestande vermeerder die NO_2^- - en NO_3^- -ione in die water.

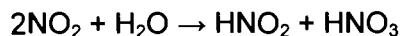
Bykomend tot die direkte elektrondissosiasie van water, reageer spesies wat aanvanklik deur elektronbotsings gevorm is ook met water.



In teenstelling met Pinart, J. et al. (1996: 131-132) wat radikaal-radikaal-rekombinasies in hul reaksieskema insluit, vind radikaal-radikaal-rekombinasies of termineringsreaksies volgens Kogelschatz, U. (2003:20) nie plaas nie. Die rede hiervoor is dat radikaalkonsentrasies in diëlektriese ontladings laag is. Die addisioneel gevormde $H\cdot$, $OH\cdot$ en $HO_2\cdot$ tree op as oksidante. $OH\cdot$ (2,8 V) het 'n veel hoër oksidasiepotensiaal as osoon (2,07 V). $OH\cdot$ is 'n belangrike oksidant in die atmosfeer om toksiese verbindinge na nie-skadelike of minder-skadelike verbindinge soos O_2 , O_3 , CO , CO_2 , H_2O en eenvoudige suur af te breek (Kogelschatz, U., 2003:20).

Volgens Piskarev, I. M. et al. (2004: 130) word die afname in osoonproduksie toegeskryf aan die reaksie van hidroksielradikale en opgewekte watermolekule met atomiese suurstof.

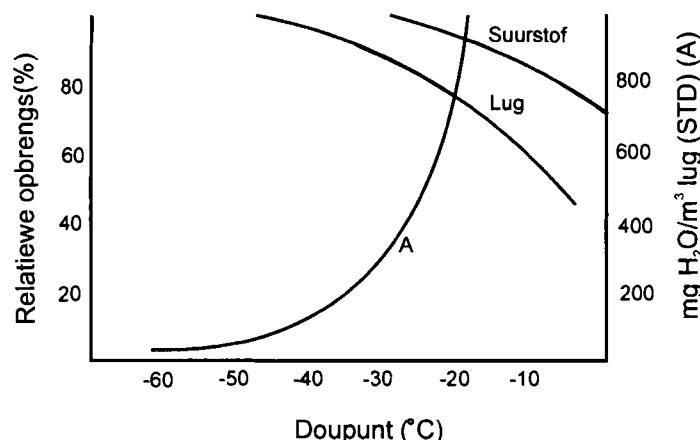
Die volgende reaksie lewer volgens Pinart, J. et al. (1996: 130) weglaatbaar klein konsentrasies HNO_2 en HNO_3 .



Humiditeit in die toevoergas het 'n drastiese effek op die N_2O_5 -konsentrasie. Selfs spore van vog by 'n doupunt van -40°C , verminder die N_2O_5 na nul.



By 'n doupunt van -10°C , met suurstoftoevoer in figuur 2.13, is die kapasiteit van 'n osoongenerator 85% van die maksimumkapasiteit en met lug, 60% (ANON, Lenntech ozone generation, 2005: 3).



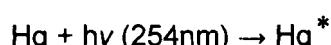
Figuur 2.13 Die invloed van lughumiditeit op osoonproduksie

Humiditeit en stikstof in die toevoerlug vorm stikstofoksiede en salpetersuur. Salpetersuur veroorsaak verwering van die apparaat. 'n Aluminiumproduk vergelykbaar met silikagel kan in 'n drogingskamer voor die gastoevoer aangewend word om die waterdamp uit die gas te verwijder (ANON, Lenntech ozone generation, 2005: 3). Groter osoonproduksie met hoë-humiditeitgasse is moontlik deur die aanbring van meer ontladingspunte en groter ontladingsoppervlak met behulp van 'n bykomende sifelektrode. Die gevvolglike gemengde oppervlak- en volume-ontlading is verantwoordelik vir die groter osoonproduksie (Haverkamp, R.G. et al., 2002: 322).

Gekondenseerde water in die monsterlyn beïnvloed nie die osoonlesings nie, omdat waterdampabsorpsie in die UV-gebied bo 186 nm weglaatbaar klein is. Waterdampdruppels veroorsaak egter probleme met blanko lesings, beskadig die lyne, filters en kuetglas en blokkeer die lyne en filters (Takeuchi, K., 2005: 467).

2.4.1.10.5 Kwik

Kwikkdampe word by dieselfde golflengte as osoon naamlik 254 nm deur die UV-spektrofotometer geabsorbeer en veroorsaak "hoë" osoonlesings (McElroy, F., 1997: 10).



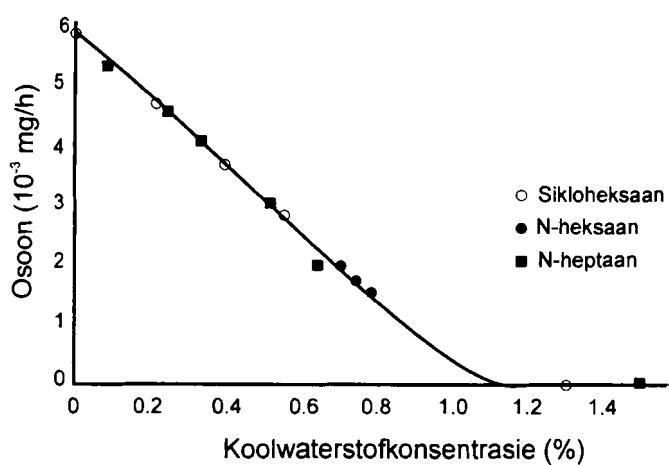
2.4.1.10.6 Stikstofoksiede

Stikstofoksiede NO_x bestaande uit $\text{NO} + \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + 2(\text{N}_2\text{O}_4 + \text{N}_2\text{O}_5)$ en N_2O ontstaan as gevolg van suurstof en osoon se reaksies met opgewekte stikstofatome en molekule (sien afdeling 2.3.2) (Eliasson, B. et al., 1984: L797,799).

Hierdie produkte verminder die osoonopbrengs as gevolg van termineringsreaksies van osoon.

2.4.1.10.7 Organiese onsuiwerhede

Organiese onsuiwerhede (sikloheksaan, n-heksaan, n-heptaan) van 1% in die toevoerlug veroorsaak dat geen osoon gevorm word nie. Organiese onsuiwerhede kan vanaf enjinuitlate, lekkasies in verkoelingsapparaat en elektrode-verkoelingssisteme afkomstig wees (ANON, Lenntech ozone generation, 2005: 3).



Figuur 2.14 Die invloed van koolwaterstowwe op osoonopbrengs

Dielektriese ontlading in lug met transformatoroliedampe (die olie is verhit tot 50 °C) verminder die osoonopbrengs met 50%. Volgens Piskarev, I. M. et al. (2004: 130) vind dié vermindering plaas as gevolg van die opbou van oksidante. Die oksidante word gevorm in die generator via die reaksies van die produkte van dielektries-geïnduseerde afbraak van koolwaterstowwe.

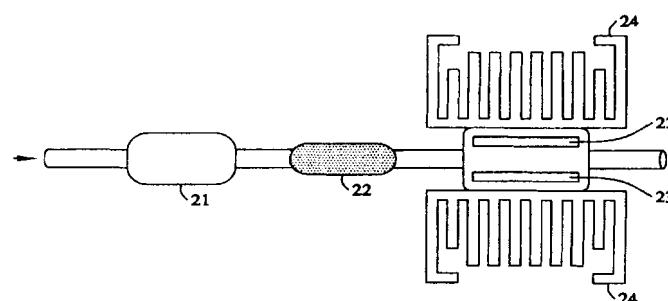
Volgens Kogelschatz, U. et al. (1987: 196) word koolwaterstofonsuiwerhede in die toevoergas na CO en CO₂ geoksideer.

2.4.1.11 Temperatuurbeheer toegepas op die osoongenerator

Aangesien die produksie van osoon gepaardgaan met die opbou van hitte in die apparaat, en temperature van hoër as 25 °C by die ontladingsopening lei tot 'n afname in osoonproduksie, is dit belangrik om die osoongenerator af te koel.

- Die gepatenteerde NO_x-reguleerder van Wu, R.

Die gepatenteerde NO_x-reguleerder van Wu, R. et al. (2003) het die bykomende faktor van die teenwoordigheid van NO_x in die geosoniseerde gas in ag geneem. Deur die NO_x in die gas te verminder, kan lug i.p.v. suurstof as gas gebruik word om koste te bespaar. NO₂-konsentrasies van 0,27 – 0,48 dpm word verkry teenoor 1,18 – 3,5 dpm van ander getoetste osoongenerators. Die osoongenerator van Wu, R. et al. verminder die NO₂-vlakte van 1,36 na 0,27 dpm met die volgende ontwerpspesifikasies:



Figuur 2.15 Die gepatenteerde NO_x-reguleerder van Wu, R.

Osoon word geproduceer deur diëlektriese ontlading tussen twee parallelle elektrodes koaksiaal in die gasstroom geplaas. Die elektrodes (23) is keramiekplate bedek met 'n silwerlaag en 'n beskermende laag.

- Lug beweeg deur 'n suigpomp (21) voor die osoongenerator om die vloeい te verhoog na meer as $12 \text{ cm}^3/\text{s}$.
- Daarna beweeg die lug deur 'n droer (22) om die lug te droog.
- Die lugstroom word afgekoel tot 10°C deur dit oor die afgekoelde plate van 'n termoelektriese verkoeler (24) te laat beweeg.

Deur middel van bogenoemde drie beheermaatreëls verminder die NO_x -konsentrasie in die lugstroom.

Die effektiwiteit van osoonproduksie neem drasties af onder 'n hoëelektrieseveldontlading van 200 Td of gastemperatuur van hoër as 350 K (Pekárek, S. et al., 2002: 222).

Die belangrikste osoonvormingsreaksie by hoë druk is $\text{O} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{O}_3 + \text{M}$ (M is O_2 of N_2) wanneer ontlading in lug plaasvind.

Die reaksietempo-afhanklikheid van temperatuur T_g vir bogenoemde reaksie word gegee deur die vergelyking van Pekárek, S. et al. (2002: 225) soos genoem in afdeling 2.4.1.7.

$$k = 2,5 \times 10^{-35} e^{970/T_g} \text{ cm}^6/\text{s}$$

Osoonvorming neem dus af met temperatuurstyging.

Die reaksietempo aangedui deur

$$k = 1,5 \times 10^{-12} e^{-1300/T_g} \text{ cm}^3/\text{s}$$

van die mees dominante osoonverliesreaksie

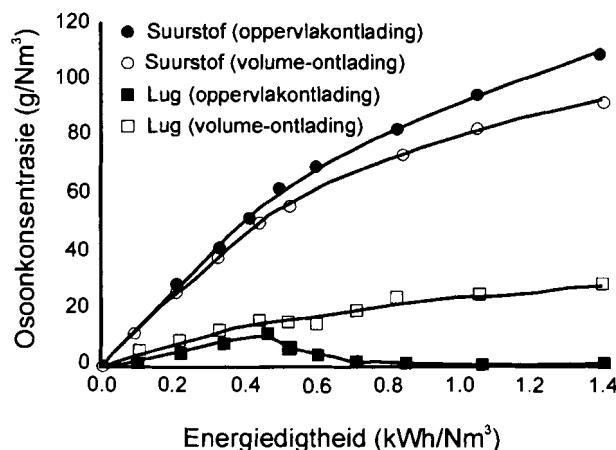


neem toe met toenemende temperatuur en in besonder met toenemende temperatuur in die ontladingsruimte (Pekárek, S. et al., 2002: 225).

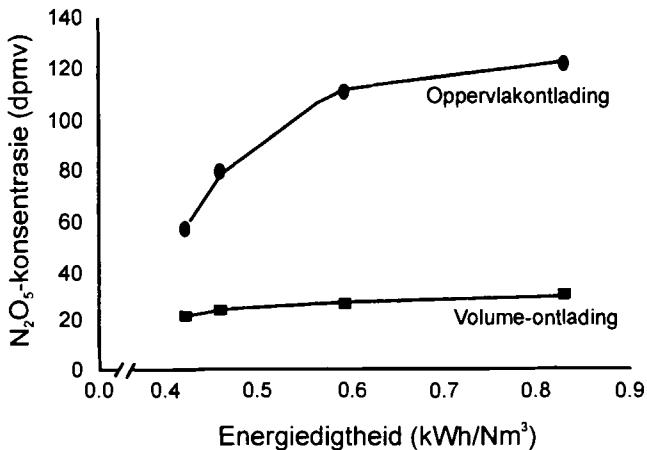
In teenstelling met osoon word NO_x -vorming bevoordeel deur hitte, naamlik deur die temperatuur in die ontladingsruimte. Wanneer die temperatuur toeneem en die osoonkonsentrasie afneem, vermeerder die rol van die dominante osoonverliesreaksie, die NO -konsentrasie neem toe en die NO_2 -konsentrasie neem af (Pekárek, S. et al., 2002: 224, 225, Pietsch, G. J. et al., 2005:4).

Die konsentrasie van N_2O_5 en N_2O is nie temperatuurafhanklik nie omdat die vormingstempo van stikstofatome en opgewekte stikstofmolekule konstant bly met veranderende temperatuur en byna al die stikstofatome na N_2O_5 geoksideer word en 'n deel van die opgewekte stikstofmolekule na N_2O omgeskakel word (ANON, Ozone generation and application, 2005: 11).

Kogelschatz, U. et al. (1987: 200) en Haacke, M. et al. (2002: 199, 200) het in teenstelling met bogenoemde bevind dat die konsentrasie van N_2O_5 toeneem met toename in temperatuur. Die gesimuleerde bevindings met behulp van Poisson se vergelyking, is deur die metings in figuur 2.17 aangedui, bevestig. (Haacke, M. et al., 2002: 199, 200). Stikstofoksiedvorming in oppervlakontlading is ongeveer 6x hoër as met volume-ontlading en verklar die afname in osoonkonsentrasie met oppervlakontlading soos in figuur 2.16 aangetoon (Haacke, M. et al., 2002: 200).



Figuur 2.16 Osoonkonsentrasie teenoor energiedigtheid in lug en suurstof vir oppervlakte- en volume-ontlading
($p = 1 \text{ bar}$, $\epsilon = 8,4$)



Figuur 2.17 N₂O₅-konsentrasie teenoor energiedigtheid vir oppervlakte- en volume- ontlading
(lug teen 1 bar, $\epsilon = 8,4$)

Osoongenerators met onvoldoende afkoelingsmeganismes produseer meer N₂O₅. Die konsentrasie van N₂O is ook volgens Kogelschatz, U. et al. (1987: 200) nie temperatuurafhanklik nie.

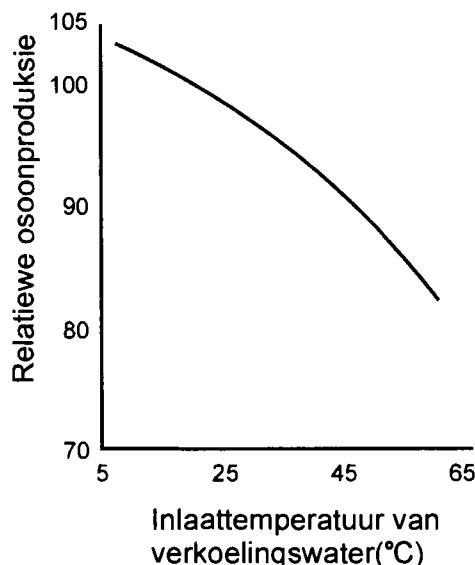
In osoongenerators met koplanêre elektrodes is daar 'n meer homogene verspreiding van energie sodat effektiewe verkoeling moontlik is, terwyl by osoongenerators met oppervlakontlading temperatuurstyging by die oppervlakelektrode onvermydelik is en sodoende die osoonopbrengs verlaag (Haacke, M. et al., 2002: 201).

Omdat pulsontlading 'n relatief laekragelektriese-ontlading is, word dié ontlading gebruik sodat die gas nie verhit tydens die puls nie, en die elektrone hoë energie in 'n kort tyd kan bereik.

Optimum osoonproduksie word bereik deur eerder te koncentreer op hitteverwydering vanaf die wande van die generator as om die toevoergas te verkoel. Die energie verwyder vanaf die toevoergas met afkoeling tot -5 °C, is 3,8 mW. Laasgenoemde is klein in vergelyking met die kragverbruik van die osoongenerator van 20 – 80 000 mW. Die verkoelde gas word oombliklik verhit in die ontladingsruimte en kanselleer sodoende die verkoeling van die gas. Daar is gevind dat die temperatuur van die inlaatgas geen invloed op die uitlaatgastemperatuur het nie (Haverkamp, R. G., 2002: 325).

Gas kan ook deur die ontladingsruimte gepomp word om oorverhitting van die gas en ontladingsomhulsel te voorkom (Pekárek, S. et al., 2002: 221, 225).

Afkoelingsmeganismes kan waaiers of termostaatbeheerde verkoelingskanale vir lug of water om die osoongenerator wees. ANON, Lenntech Ozone generation (2005: 2) beveel aan dat die verkoelingswater nie warmer as 20 °C moet wees nie.



Figuur 2.18 Die invloed van waterverkoeling op osoonopbrengs

2.4.2 Osoonmeting by osoongenerators

2.4.2.1 Monsterneming

Osoon is baie reaktief en dissosieer met kontak met die komponente van die metingsinstrument. Inerte en skoon materiaal moet gebruik word. Fluoropolimere, byvoorbeeld politetrafluoroetileen (PTFE) of glas is noodsaaklik vir gebruik as gastoovoerbuise en ander dele van die apparaat wat in kontak kom met die monstergas en water. Monstervloeい en buisdeursnit moet groot genoeg wees om osoonverlies as gevolg van kontakdissosiasie en verval te minimaliseer (Takeuchi, K., 2005: 463). Daar is gevind dat die halfleeftyd van osoon in silikoonrubberpipe ongeveer 14 minute is (Dohan, J. M. et al., 1987: 320, 330).

Deeltjies moet uit die monster gefiltreer word deur PTFE-filters. Vlekvrye staal is geskik vir aanwending waar hoë osoonkonsentrasies gebruik word.

2.4.2.2 Die meet van osoon in die gasvorm

Analitiese metodes vir die meet van osoon moet aan verskeie vereistes voldoen en oor 'n wye reeks konsentrasies kan meet, naamlik 10^{-3} - 10^0 dpmv vir omgewingsmonitering, 10^{-2} -

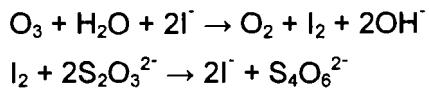
10^2 dpmv vir biologiese blootstelling en toetsing, en 10^1 - 10^5 dpmv vir industriële toepassings (dpmv = 10^{-6} mengverhouding per volume omgewingslug: sien bylae 4.3.2). Wanneer op 'n metode besluit word, moet die beperkinge daarvan in ag geneem word. Outomatiese en droë metodes word verkies bo nat metodes met die hand gedoen, omdat eersgenoemde twee metodes deurlopend en sonder toesig gedoen kan word. Dié instrumente lewer betroubare resultate as gereëlde onderhoud gedoen word (Takeuchi, K., 2005: 463 - 469).

2.4.2.2.1 Jodometrie

Jodometrie as standaard- of verwysingsmetode word algemeen gebruik ten spyte van die nadele van die metode.

Die jodiedosoonreaksie in waterige oplossings, gespesifiseer deur U.S. EPA as verwysingsmetode vir totale oksidant, vorm die basis vir die bepaling van osoon. Jodiedione in oplossing word deur osoon geoksideer.

Die basiese reaksies van die analise is



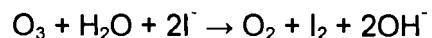
Die trijodiedione kan spektrofotometries by 352 nm, coulometries of deur middel van volumetriese titrasie teen natriumtiosulfaatstandaardoplossing en stysel as indikator, bepaal word.



Bogenoemde twee reaksies speel volgens Gordon, S. A. et al. (2000: 12) ook 'n rol in die reaksiesisteem, maar die mate van deelname, indien enige, is onbekend.

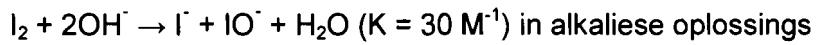
Volgens Gordon, S. A. et al. (2000: 12, 13) is die kompleksiteit van die reaksiesisteem die rede vir die gebrek aan akkuraatheid van die metode. Die volgende is 'n beskrywing van die volgorde van die reaksiesisteem:

Die vorming van I_2 en OH^- veroorsaak 'n vinnige styging van die pH in die vroeë stadium van die reaksie en die opbou van I_2 is sigbaar as die toename in intensiteit van die geel kleur van die oplossing.





Die pH stabiliseer op pH 11 na verbruik van OH^- deur I_2 .

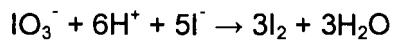


Die OH^- -konsentrasie sowel as die pH verminder nou geleidelik met die gebruik van I_2 en die vorming van IO_3^- .

Wanneer die tempo van OH^- -vorming deur die primêre reaksies gelyk is aan dié van die sekondêre reaksies, stabiliseer die pH weer naby die oorspronklike waarde.

Wanneer óf al die O_3 óf KI opgebruik is hou I_2 op met vorm maar die sekondêre reaksies hou aan om I_2 en OH^- te gebruik.

Laasgenoemde word bevestig deur die waarneming dat die oplossing uiteindelik kleurloos word en die teenwoordigheid van KIO_3 bevestig word deur die onderstaande reaksie.



2.4.2.2.1.1 Nadele van die jodometriese metode

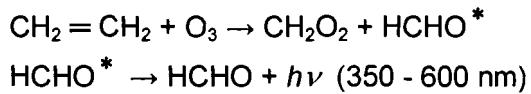
- Die reaksie is nie spesifiek vir osoon nie en kan ook vir die bepaling van H_2O_2 , NO_2 , peroksiasielnitratre en ander oksiderende spesies met verskillende response gebruik word. Die totale oksidantkonsentrasie word só gemeet en nie net die osoon nie.
- Die jodiumstoigiometrie word deur die pH van die oplossing en die jodiedkonsentrasie bepaal. 'n Neutraalgebufferde kaliumjodiedoplossing (1% KI in 0,2 mol L^{-1} fosfaatbuffer, pH $7,0 \pm 0,2$) word onder andere gebruik om die onstabilitéit van die reaksie te minimaliseer.
- Die gevormde jodium kan vanuit die oplossing verdamp.
- Hoë O_3 -konsentrasies en langer borreltyd veroorsaak afwykings in I_2 -generasie (Gordon, S. A. et al., 2000: 13).
- Die deteksielimiet van die metode is 10 dpbv (dpbv = 10^{-9} mengverhouding per volume) vir lugmonsters van 30 tot 60 L (monsterneming teen $1 - 2 \text{ L min}^{-1}$ vir 30 min).

- Swaeldioksied in lug los op in die monsteroplossing en gee 'n negatiewe fout. Chroom(VI)oksiedgeïmpregneerde filters kan SO₂ vanuit die lugmonster verwijder en NO na NO₂ oksideer. Die filters word voorberei deur die 400 cm³ glasveselfilter in 'n mengsel van gesuiwerde water (15 cm³), gekonsentreerde swaelsuur (0,7 cm³) en CrO₃ (2,5 g) te plaas en vir een uur teen 80 - 90 °C te verhit.
- NO en NO₂ gee 'n 3 - 5% relatiewe respons vir die ekwivalente hoeveelheid osoon. Hierdie respons moet eksperimenteel vasgestel word.

2.4.2.2.2 Chemiluminessensie

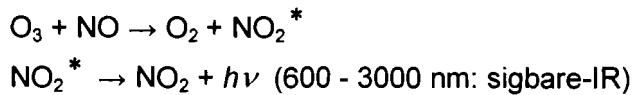
In chemiluminessensie (CL) word die oormaat energie van die reaksie met osoon as lig vrygestel. Die chemiese reaksie maak die metode selektief vir osoon. Inteenstelling met ander fotometriese metodes is invalslig nie nodig om CL seine te verkry nie. 'n Hoë basislynstabiliteit verseker lae deteksielimiete in besonder vir gasfase-CL.

Osoon osoniliseer olefiniese dubbelbindings in organiese verbindingss (osonolise). Wanneer osoon met eteen reageer, vorm elektronies opgewekte formaldehyd wat sigbare lig uitstraal (Nederbragt se metode)



Die CL (maksimum by 450 nm) word deur 'n fotovermenigvuldigerbus waargeneem. Die eteen-CL metode is hoogs selektief vir osoon en het 'n vinnige respons (Takeuchi, K., 2005: 463 - 469).

'n Tweede gasfase-CLmetode gebruik NO



'n CL NO_x-analiseerder neem die uitgestraalde energie waar. Die reaksie van osoon met NO is vinniger as met eteen en die metode word verkies wanneer 'n vinnige respons benodig word (byvoorbeeld in fluktuasiemetings met vliegtuie). Hierdie metode is egter sensitief vir waterdamp en kan lei tot NO besoedeling.

Die osoon-NO-reaksie is ook 'n gasfase-titrasiereaksie. Die monstergas word met 'n lae konsentrasie standaard-NO-gas gemeng en die NO₂ word dan gemeet.

Vloeistoffase CL-metodes gebruik kleurstof as reagens. Voorbeeld hiervan is 'n etanoïese oplossing van Rhodamien B en galliesesuur, Rhodamien B in 'n silikonskyfie geabsorbeer, eosien Y en kumarien 47. Die meganisme van die osoon-kleurstof CL is nog nie bekend nie.

Sommige osonolisreaksies in die vloeistoffase gee ook CL, naamlik 'n waterige oplossing van indigo-5,5'-disulfonaat (IDS) en osoon straal lig met 'n golflengte van 430 nm uit en word spektrofotometries sowel as met CL bepaal.

2.4.2.2.2.1 Die nadele van osoonbepaling deur middel van chemiluminessensie

Die nadele verbonde aan die metode is dat fluktuasies in monstervloei metings affekteer en een vlambaar is (Takeuchi, K., 2005: 463 - 469).

2.4.2.2.3 UV-spektrofotometrie

Die meting van osoon in die laboratorium met behulp van ultravioletspektroskopie berus op die feit dat osoon lig in die Hartleybandgebied by 254 nm absorbeer. Osoon verval in die reaktor ongeveer $1,6 \times$ vinniger in lug as in suurstof (Dohan, J. M. et al., 1987: 330, 331).

$$K \approx 1,7 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ in } O_2 \text{ en } K \approx 2,7 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ in lug}$$

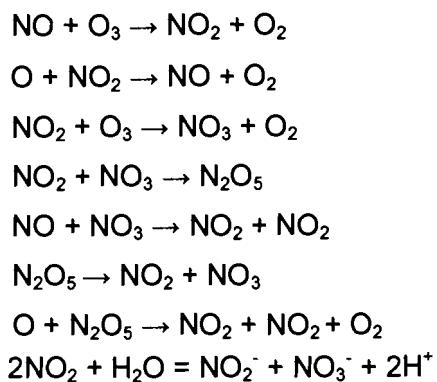
Die Suid-Afrikaanse wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993 skryf nie 'n metode voor vir die bepaling van osoonproduksie nie. Volgens Anon, Determination of ozone (2005: 1) is UV-spektrofotometrie die algemeen aanvaarbare metode. Grunwell, J. et al. (1983:20) beveel UV-spektrofotometrie aan wanneer kontaminantvrye monsters geanaliseer word.

Daar bestaan 'n behoefte aan 'n betroubare verwysingsmetode. Dit is dus noodsaaklik om die akkuraatheid van UV-spektrofotometriese bepalings van osoon gegenereer deur osoongenerators te bevestig. Die Beer-Lambert verhouding by die spektrofotometriese bepalings is betroubaar, maar daar moet daarteen gewaak word om slegs die moléreabsorpsiewaarde wat in die literatuur aangegee word, naamlik 134 te gebruik vir die berekening van osoonkonsentrasies. Instrumente moet dus gekontroleer word met byvoorbeeld die jodometriese metode.

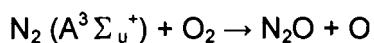
2.4.3 Stikstofoksiedmeting by osoongenerators

Stikstofoksiedmeting by osoongenerators wat met lug bedryf word, is belangrik omdat die oorskryding van die beroepsblootstellingsdrempel van stikstofoksiede in osoongeneratorgas 'n skadelike invloed het op die mens se gesondheid.

Die ionchromatograaf is geskik as meetinstrument van die totale NO_x omdat alle stikstofoksiede, behalwe N_2O in die teenwoordigheid van osoon uiteindelik nitrate in water vorm (Kogelschatz, U. et al., 1987: 198-200).



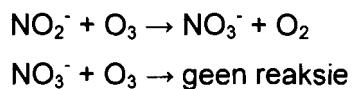
'n Deel van die opgewekte stikstofmolekule word na N_2O (laggas) omgeskakel (Eliasson, B. et al., 1984: L797,799). N_2O is 'n stabiele molekuul wat nie deur osoon aangeval word, met ander NO_x -spesies reageer, of deur temperatuurstyging tot 26 °C beïnvloed word nie (Kogelschatz, U. et al., 1987: 201,204).



Humiditeit in die toevoergas het 'n drastiese effek op die N_2O_5 -konsentrasie. Selfs spore van vog by 'n doupunt van – 40 °C verminder die N_2O_5 -konsentrasie na nul volgens die onderstaande reaksie (ANON, Lenntech ozone generation, 2005: 3):



In lug, in die teenwoordigheid van osoon, word alle nitrietione na nitraatione geoksideer (Williams, S. et al., 2002: 999).



Die konsentrasie nitraatione in die watermonster, waargeneem deur die geleidingsdetektor van die ionchromatograaf, word verwerk om die NO_x -produksie van die osoongenerator te bepaal. Die stikstofoksiedproduksie van die osoongenerators word bereken deur piekintegrasie van die chromatogram van die ionchromatograaf.

2.4.4 Veiligheidsmaatreëls vir die gebruik van osoon en stikstofoksied (Damez, F 1981: 345 - 365)

2.4.4.1 Toksisiteitstandaarde

Bylae 4.3.3 bevat getabuleerde waardes van die Suid-Afrikaanse wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993 se regulasies vir gevaarlike chemiese substansies.

Osoon is as gevolg van sy hoë elektrochemiese oksidasiepotensiaal by konsentrasies hoër as 1dpm ($1 \text{ cm}^3/\text{m}^3$) toksies. O_3 se elektrochemiese oksidasiepotensiaal is 2,08 V teenoor 1,78 V van H_2O_2 en 1,23 V van O_2 (Balakrishnan, P. A. et al., 2002:79; Klein, H-P., 1990: 11).

Die beroepsblootstellingsdrempel van O_3 in lug in Suid-Afrika, die VSA en die meeste Europese lande is 0,1 dpm ($0,2 \text{ mg/m}^3$) vir agt uur. Dié van Kalifornië is 0,08 dpm.

Die tydsbeswaardegemiddelde van O_3 in lug in Suid-Afrika en volgens die Amerikaanse ANSI/ASTM-standaard E 591-77 is 0,3 dpm ($0,6 \text{ mg/m}^3$) vir 15 minute (Damez, F., 1981: 346; Suid-Afrika: Wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993. Regulasies vir gevaarlike chemiese substansies).

Volgens ANON, Praxair material safety data sheet (2005: 2) is die beroepsblootstellingsdrempel 0,1 dpm vir ligte werk, 0,08 dpm vir matige werk, 0,05 dpm vir harde werk en 0,2 dpm vir ≤ 2 uur se blootstelling.

In Rusland is die limiet 0,05 dpm om asmatische pasiënte wat meer sensitief is vir die effek van osoon, te beskerm (Damez, F., 1981: 346).

Die Suid-Afrikaanse en Amerikaanse standaarde vir die drempelwaardes van stikstofoksiede as byprodukte van O_3 -vervaardiging is die volgende:

Die beroepsblootstellingsdrempel vir agt uur is vir NO 25 dpm of 30 mg/m^3 , vir N_2O 50 dpm, vir NO_2 3 dpm of 5 mg/m^3 en vir HNO_3 2 dpm of 5 mg/m^3 (ANON, Praxair material safety data sheet, 2005: 2; Suid-Afrika: Wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993. Regulasies vir gevaarlike chemiese substansies).

Die tydsbeswaardegemiddelde vir 15 minute is vir NO 35 dpm of 45 mg/m^3 , vir NO_2 5 dpm of 9 mg/m^3 en vir HNO_3 4 dpm of 10 mg/m^3 .

2.4.4.2 Akute vergiftiging

Blootstelling aan 100 dpm O₃ vir een tot twee minute veroorsaak respiratoriese skok, maar die effek verdwyn na 'n paar uur. Langer blootstelling of hoër konsentrasies veroorsaak longedeem.

Blootstelling aan 25 dpm NO₂ vir een minuut veroorsaak ergé longongemak (Dreisbach, R. H., 1974: 178).

2.4.4.3 Kroniese vergiftiging

Allergiese reaksies word waargeneem by lae konsentrasies van osoon, maar die werklike effek is moeilik bepaalbaar. Fakhrzadeh, L. et al. (2004: L279) het met toetse op muise vasgestel dat osoongeïnduseerde longskade geassosieer word met die vorming van reaktiewe stikstofspesies.

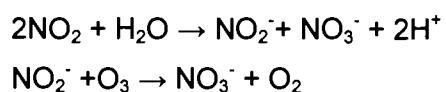
Daar is gevind dat reuksensitiwiteit vir O₃ verhoog met blootstelling aan lae konsentrasies O₃. Die onderste limiet van waarneming deur middel van reuk is tussen 0,01 en 0,05 dpm.

Oogirritasie word deur meer as 5% van individue ondervind wat aan 0,01 dpm O₃ blootgestel is. Blootstelling aan 0,02 dpm O₃ vir drie ure verminder nagvisie.

Osoon veroorsaak chromosoomskade asook velveroudering (Dreisbach, R. H., 1974: 181, 182).

Wanneer osoon vervaardig word met lug as toevoergas kan die stikstofdioksied (NO₂) konsentrasies van 4 dpm bereik, wat hoër is as die beroepsdrempelwaarde van 3 dpm. Hoë NO₂-vlakke lei tot trageobrongitis as gevolg van beskadiging van die asemhalingsweë en 0,074 dpm NO₂ beïnvloed nagsig nadelig.

Stikstofoksiede in water vorm nitriete en nitrate.



Aangesien osoon mediese toepassings het, is die teenwoordigheid van nitriete ongewens weens die kankervormende nitrietverbindings wat kan vorm. Die maksimum toelaatbare nitriet- en nitraatvlakke in drinkwater is 0,2 en 50 mg/L

Osoonmonitors met alarms word by osoonaanlegte gebruik om te waarsku teen verhoogde osoonvlakke.

2.4.4.4 Skade aan die omgewing

Kontak met alle oksideerbare materiaal, organies sowel as anorganies moet vermy word. Organiese polimere en in die besonder rubber word deur osoon afgebreek.

Die salpetersuur wat deur stikstofoksiede in 'n klam omgewing vorm, lei tot verhoogde korrosie by metale. Organiese verbindings word ook geoksideer en verkleur soms geel.

2.4.4.5 Hantering van osoon

Osoon kan by lae temperatuur as vloeistof gekondenseer word. Osoon is egter termies onstabiel en die vloeistof of gekonsentreerde gas ontploff besonder maklik.

Osoon reageer met onversadigde organiese verbindings om osoniede te vorm. Laasgenoemde is onstabiel en kan spontaan ontploff. Reste oplosmiddels wat met osoon in aanraking was moet met reduseermiddels soos tiosultaat behandel word om osoniede te redudeer.

2.4.4.6 Voorkomende maatreëls

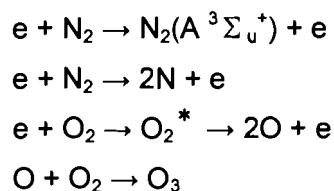
Personnel moet ingelig word in verband met die gevare van osoon en stikstofoksied. Wanneer daar 'n lekkasie of swak ventilasie is, moet 'n osoonmasker met lugtoevoer gedra word. Aangesien osoon in die omgewing vanself ontbind is dit gewoonlik voldoende om 'n vertrek met 'n oormaat osoon vir sowat 'n uur nie te betree nie.

2.5 Opsomming en kommentaar oor die literatuurstudie

Omdat die konsentrasie van osoon in die lug te klein is om dit vanuit die lug te herwin met lugskeidingsaanlegte, word osoon uit suurstof en stikstof vervaardig deur middel van gasontladingsplasmas gevorm deur elektriese ontlading.

Die vervaardiging van osoon berus op die vorming van 'n korona deur middel van ontlading tussen twee elektrodes waarop krag teen 'n sekere frekwensie en potensiaalverskil aangelê en 'n suurstofbevattende gas deurgeblaas word.

Die eerste stap in die vorming van O_3 en NO_x is die elektronimpakdissosiasie van molekulêre O_2 en N_2 (Pekárek, S. et al., 2002: 225; Akhmedzhanov, R. A. et al., 1997: 266).



Die elektrone het genoeg energie (6-10 eV) om beide N_2 - en O_2 - molekule te dissosieer.

Dit is 'n besondere tegnologiese uitdaging om kondisies te vind waarby osoon in lug vervaardig kan word sonder dat stikstofoksiede vorm. Om die hoeveelheid osoon geproduseer vanaf O_2 en N_2 te verklaar, word die volgende twee aannames bykomend tot die standaardreaksies, deur Eliasson, B. et al. (1984: L799) gemaak:

Die meeste opgewekte N_2 ($B\ ^3\Pi_g$) dissosieer O_2 -molekule direk.

Omtrent die helfte van die stikstofatome vanaf die elektronimpakdissosiasie van N_2 is in die opgewekte toestand $N\ (^2D)$.

Die belangrikste reaksies in osoonvorming is 21% O_2 /78% N_2 -lugmengsels en die relatiewe bydrae daarvan tot osoonvorming word in tabel 2.1 gegee.

Tabel 2.1 toon dat die helfte van osoon deur direkte elektronimpakdissosiasie van O_2 en die ander helfte van reaksies met N -atome of opgewekte N_2 -molekule afkomstig is.

Figuur 2.1 toon die potensiële energievlake van O_2 en N_2 in bogenoemde reaksies aan. Die * pyle toon die energiekoppeling tussen die A- en B-vlake van N_2 en die 8,4 eV en 6,0 eV dissosiatiewe vlake van O_3 .

Figuur 2.1 toon dat sekere opgewekte suurstof- en stikstofmolekule ewe veel energie benodig om na hoër energievlake opgewek te word. Elektrone met dié hoeveelheid energie sal dan die opgewekte suurstof- en stikstofmolekule gelyktydig dissosieer na opgewekte suurstof- en stikstofatome wat verder reageer om O_3 en NO_x te vorm.

Ontwerpspesifikasies van osoongenerators sal dus beide die O_3 - en NO_x -produksie beïnvloed.

Wanneer die stikstofinhoud van die suurstoftoevoergas kleiner as 4% is, tree die N_2 op as katalisator om die osoonproduksie te verhoog. Die teenwoordigheid van die N_2 verhoog die vrye elektrondigtheid in die ontladingsgebied en lei aanvanklik tot die verhoging in die vorming van suurstofatome en osoon.

Korona-ontlading in vogtige lug gee genoeg energie om N_2 , O_2 en H_2O te dissosieer om HNO_3 te vorm. Skade aan die omgewing word veroorsaak omdat HNO_3 in die waterdamp in die lug vorm. Bykomende skade kan veroorsaak word deur OH-radikale gevorm onder vogtige toestande.

Wanneer osoon vervaardig word met lug as toevoergas kan die stikstofdioksied (NO_2) konsentrasies van 4 dpm bereik, wat hoër is as die beroepsdrempelwaarde van 3 dpm. Hoë NO_2 -vlakte lei tot trageobrongitis as gevolg van beskadiging van die asemhalingsweë en 0,074 dpm NO_2 beïnvloed nagsig nadelig.

Personnel en kliënte moet ingelig word in verband met die gevare van osoon en stikstofoksied. Wanneer daar 'n lekkasie of swak ventilasie is moet 'n osoonmasker met lugtoevoer gedra word.

HOOFSTUK 3

3 Eksperimentele besonderhede

3.1 Navorsingskema

- 1 Die ontwikkeling van gasabsorpsie-opstellings vir die bepaling van
 - Osoon
 - Stikstofoksied
- 2 Die ontwikkeling van analitiese tegnieke
 - Die meting van osoon in die gasstroom van die osoongenerator deur middel van die Jodometriese metode en
 - UV-spektrofotometrie
- 3 Die meting van spoorhoeveelhede nitraat en nitriet in water deur middel van ionchromatografie
- 4 Vergelyking van stikstofoksiedproduksie van osoongenerators
- 5 Invloed van bedryfskondisies op stikstofoksied- en osoonproduksie van osoongenerators:
 - Gasvloeい
 - Droë sintetiese lug
 - Stikstof
 - Suurstof
 - Suurstof-stikstofgasmensels
 - Koolstofdioksied
 - Waterdamp
 - Temperatuur van die inlaatgas
 - Frekwensie
 - Invloed van inlaatgastemperatuur op die temperatuur van die ontladingsruimte
 - Invloed van kontaminante op osoonproduksie
- 6 Kontrole
 - Teenwoordigheid van opgewekte spesies buite die ontladingsruimte
 - Blanko lesings
 - Standaarde
 - Deteksielimiete
 - Herhaalbaarhede
 - Lineariteit

3.2 Eksperimentele benadering

Na aanleiding van gegewens uit die literatuurstudie en die beskikbaarheid van die Waters ionchromatograaf, Shimadzu en Ultrospec 3000 UV/sigbarelig-spektrofotometers by die Skool vir Chemie en Biochemie is besluit om die volgende metodes te gebruik:

- Die jodometriese metode vir die kontrolering van UV-spektrofotometriese osoonlesings.
- Die UV-spektrofotometriese metode vir die bepaling van osoonproduksie van osoongenerators.
- Die ionchromatografiese metode vir die bepaling van stikstofoksiedproduksie van osoongenerators.

3.3 Chemikalieë

Chemikalieë is verkry vanaf erkende chemikalevervaardigers en sonder enige verdere suiwering gebruik, tensy anders vermeld.

3.4 Gas

Sintetiese lug: Afrox instrumentgraad (nul). O₂: 20-22%, N₂: 78-80%.

Suurstof: Afrox ultrahoë suiwerheid (UHP) (N4.5). Minimum suiwerheid: O₂: 99,995%.

Stikstof: Afrox instrumentgraad (N5.0). Minimum suiwerheid: N₂: 99,999%.

Koolsuurgas: Afrox tegniese graad, nat.

3.5 Water

Millipore milli-Q gesuiwerde water met weerstand >18 µs/cm is gebruik vir die opmaak van alle reagensoplossings en die was en spoel van apparaat.

3.6 Apparaat

Die volgende is 'n beskrywing van apparaat gebruik vir die vervaardiging van osoon en die bepaling van osoon- en stikstofoksiedproduksie.

3.6.1 Ozone Buddy©-osoongenerator

SHF - F 19005 , B , 19005 V) TORIETTENSET VOOR DE STERIZONE OZONEGENERATOR. Genoegte3 : Genoegte2
niet uitaangegeven effetaat dienende. Genoegte3 : Genoegte2
mapis n' si (G10 - G11 na
brow



Figuur 3.1 Ozone Buddy© Tipe OB-MRK1 serienommer OB\SA00615

- Tipe osoongenerasie

Osoon word gegenereer deur 'n ingeboude Sterizone©-osoongenerator (sien afdeling 3.6.2.) deur middel van diëlektriese volume-ontlading by atmosferiese druk.

- Temperatuurbheer

Die osoongenerator word met 'n waaier verkoel.

- Druk en toevoergas

'n Membraanpomp word aangewend om lug deur die Sterizone©-eenheid te pomp teen ongeveer 155 cm³/s. 'n Bykomstige waaier verkoel die Sterizone©-eenheid en die ander elektroniese onderdele in die osoongenerator.

- Kragverbruik

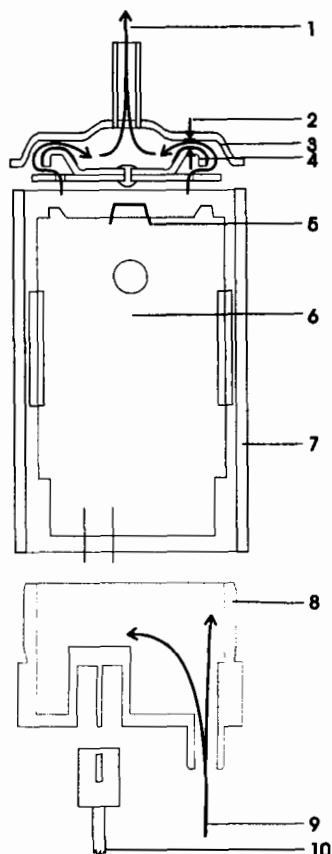
Wisselstroom 230V, 39W, 0,17A, 50Hz.

- Osoonproduksie

Die maksimum osoonproduksie is 300 mg/h (Anon, Sterizone, 2005: 1).

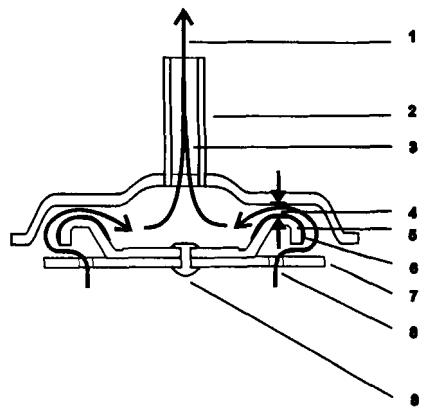
3.6.2 Sterizone©

Sterizone©: Serienummer: 334501017, Reg no: 1996/001338/07 (Visser, B., 2002: 1 - 14a en 1/9 - 9/9) is 'n algemene osoongenerator wat in 'n verskeidenheid toestelle ingebou kan word.



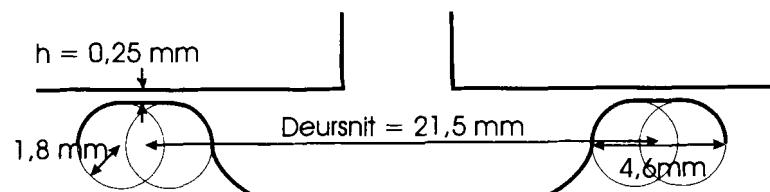
- | | |
|--|------------------------------------|
| 1: Gasuitlaat | 6: Stroombaan met pulsgenerator |
| 2: Ontladingsgaping | 7: Geanodiseerde aluminiumomhulsel |
| 3: Geanodiseerde aluminiumdop | 8: Plastiekdop |
| 4: Elektrode gedeeltelik bedek met silikonrubber | 9: Gasinlaat |
| 5: Kontakdraad | 10: 220 V elektriese aansluiting |

Figuur 3.2 Sterizone©-syaansig

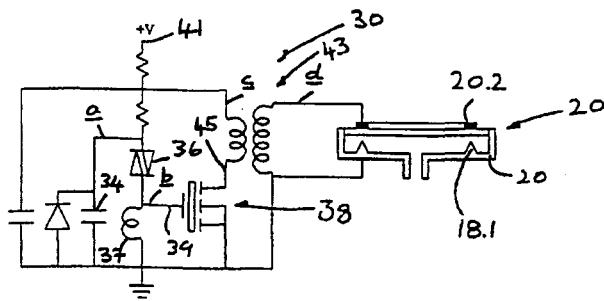


- | | |
|-----------------------------------|---------------------------------------|
| 1: Gasvloeい | 6: Silikonrubber diëlektriese laag |
| 2: Geanodiseerde aluminiumdop | 7: Skyf waarop elektrode gemonteer is |
| 3: Gasuitlaat in die dop | 8: Sirkelvormige openinge in die skyf |
| 4: Ontladingsgaping: 0,18 - 0,3mm | 9: Aluminiumklinknael |
| 5: Elektrode | |

Figuur 3.3 Elektrodesamestelling van die koronadop van Sterizone©



Figuur 3.4 Skematische voorstelling van die afmetings van die Sterizone©-elektrode



- 30: Stroombaan bestaande uit:
34: Kapasitor
36: SIDAC (silikondiode vir wisselstroom)
37: Induktor
38: MOSFET (metaaloksiedhalfgeleier veldeffektransistor)
- 39: Poort van MOSFET
41: Gelykstroomspanning van 150V
43: Wikkeling van die transformator
45: Aftapbronstroombaan van MOSFET
a, b, c, d: spanningsgolfvorme hier gemeet

Figuur 3.5 Selfossillerende stroombaan vir die elektrodesamestelling van Sterizone®

- Tipe osoongenerasie

Osoon word gegenereer deur diëlektriese volume-ontlading by atmosferiese druk.

- Plasing van die elektrodes

Die plasing van 'n sirkelvormige elektrode bo-op 'n isolerende skyf van osoon- en koronabestande plastiek. Die skyf met die eerste elektrode word binne die geanodiseerde aluminiumdop, die tweede elektrode, geplaas.

- Diëlektriese laag

Die diëlektriese laag naamlik silikonrubber word op die sirkelvormige rif op die elektrode aangebring.

- Dimensies van die ontladingsruimte

Die elektrodeskyf is $0,24 \pm 0,06$ mm vanaf die basis aan die uitlaatkant van die geanodiseerde aluminiumdop. Die aanslaningsgapingwydte van elke Sterizone® word gemeet nadat die apparaat gebou is en wissel na gelang van die dikte van die silikoonrubberlaag op die elektrode. Die besonder klein aanslaningsgaping van Sterizone®

maak 'n spanningspuls met 'n spanningswydte korter as 100 nanosekondes moontlik. Laasgenoemde stem ooreen met resultate van Gibalov, V.I. et al. (2003: 442) naamlik dat die verkleining van die aanslaningsgaping die tydsduur van die ontladingspuls (pulswydte) verkort.

Die maksimum elektriese veldsterkte \bar{E} is in die orde van 10 kV/mm in die aanslaningsgaping.

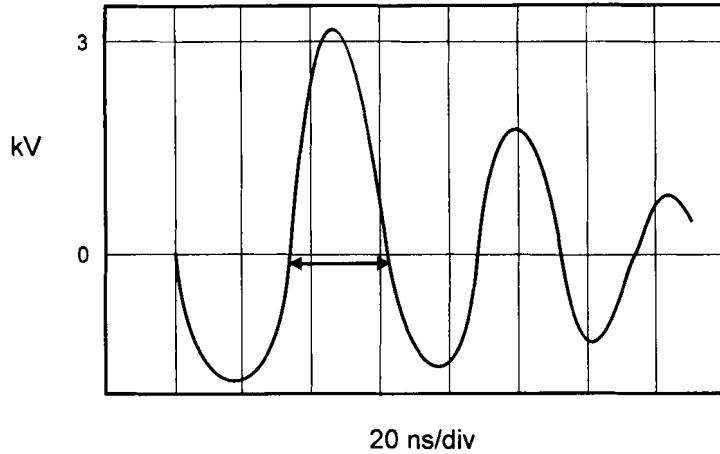
- **Spanningspuls**

'n Snelveranderende elektriese veld teen 'n tempo vinniger as $3 \times 10^8 \text{ V mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ word veroorsaak deur onderbroke stroomspanningspulse op die elektrode toe te dien. Dié tempo stem ooreen met bevindinge van Bogaerts, A. et al. (2002: 615,617) dat wanneer die spanning in die vorm van pulse met lengtes van ms - μs toegepas word, kan die ontlading by hoër piekspanning (3 - 8 kV) en -stroom vir dieselfde kragtoevoer plaasvind. In die plasma, gevorm deur die pulse, het die elektrone hoër energie as die ione en neutrale spesies en ionisasie en rekombinasie vind op verskillende tydskale, aan teenoor af tye, plaas. Die voordeel hiervan is verhoogde effektiwiteit van osoonproduksie.

Elke spanningspuls het 'n spanningswydte korter as 100 nanosekondes. Volgens Motret, O. et al. (2002: 208) verbeter ultrakort hoëspanningspulse die osoonproduksie deur 'n steil spanningsfront (ongeveer 10^{12} V/s) wat binne nanosekondes lei tot die ontladingspanning van 3 - 8 kV.

Die frekwensie van die pulse is 20 kHz. Dié optimale frekwensie is onafhanklik deur Visser, B bepaal (Privaat kommunikasie: Visser, B., 2006). Volgens Alonso J. M. et al. (2003: 363) is die osoonproduksie van osoongenerators met elektriese modelle met lae frekwensies (1 – 1000 Hz) laer as die osoongenerators toegerus met hoëfrekwensie-omskakelaars (15 – 20 kHz).

Haverkamp, R. G. et al. (2002: 325) toon ook dat daar 'n optimum frekwensie van 19 kHz is, aangesien frekwensies van 300Hz – 3kHz geen effek op osoonproduksie het nie en osoonproduksie afneem met frekwensies groter as 19 kHz.



Figuur 3.6 Spanningsgolfvorm by die hoëspanninguitgang van die Sterizone®-stroombaan gemeet

- Kragverbruik

Wisselstroom 215-235V, 6W, 50/60Hz.

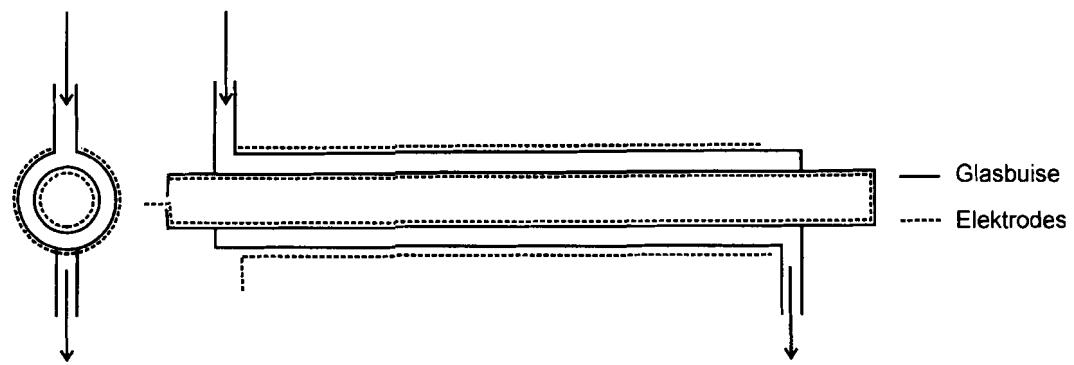
- Osoonproduksie

Die ontwerposoonproduksie in lug is 'n minimum van 225 mg/h teen lugvloei van $30 \text{ cm}^3/\text{s}$ en 'n maksimum van 280 mg/h teen lugvloei van $200 \text{ cm}^3/\text{s}$.

Die ontwerposoonproduksie in suurstof is 'n minimum van 400 mg/h teen suurstofvloei van $30 \text{ cm}^3/\text{s}$ en 'n maksimum van 600 mg/h teen suurstofvloei van $200 \text{ cm}^3/\text{s}$ (Anon, Sterizone, 2005: 1).

3.6.3 Osoongenerator met verstelbare frekwensie

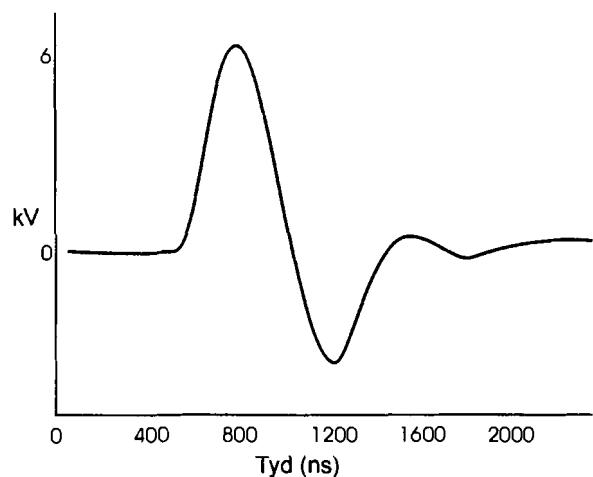
Die osoongenerator bestaan uit twee koaksiale glasbuise, 26 cm lank. Die eerste metaalelektrode is binne-in die binneste glasbuis. Die tweede metaalelektrode is buite om die buitenste glasbuis. Die frekwensie van die osoongenerator is verstelbaar vanaf 2,5 na 5,0 kHz deur die herhaling van die pulse te beheer.



Figuur 3.7 Osoongenerator met verstelbare frekwensie

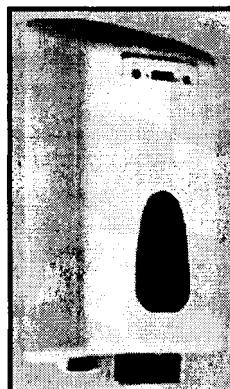
- Spanningspuls

Die spanningspuls het 'n wydte van 400 ns en 'n hoogte van 6 kV.



Figuur 3.8 Skematische voorstelling van osoongenerator met verstelbare frekwensie se golfvorm

3.6.4 Ecozein©-osoongenerator



Figuur 3.9 Ecozein©

Ecozein© met serienommer MDOZP 006 en patentnommer SA 1999/5632 vir die omhulsel van die osoongenerator.

- Temperatuurbheer

Die osoongenerator word met 'n waaier verkoel.

- Druk en toevoergas

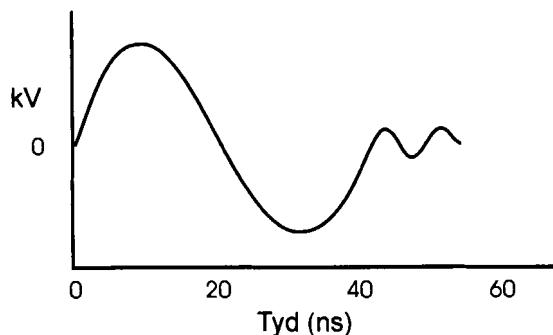
Lug word deur konveksie uit die omgewing om die toestel gesuig en teen atmosferiese druk en omgewingstemperatuur met bogenoemde waaier oor die ontladingsarea geblaas.

- Plasing van die elektrodes

Ontlading vind plaas by elektrodes wat weerskante van 'n ongeveer 1 mm dik keramiekplaatjie is. Die ontladingsplaatjie is onder by die uitlaat van die toestel.

- Spaningspuls

Die positiewe en negatiewe pulse is ongeveer ewegroot met pulswydtes van 20 μ s en word gevolg deur geen puls vir 20 μ s.



Figuur 3.10 Skematische voorstelling van Ecozein®-golfvorm

- Dimensies van die ontladingsruimte

Die spasie om die elektrode-opstelling is ongeveer 50 mm x 50mm.

- Kragverbruik

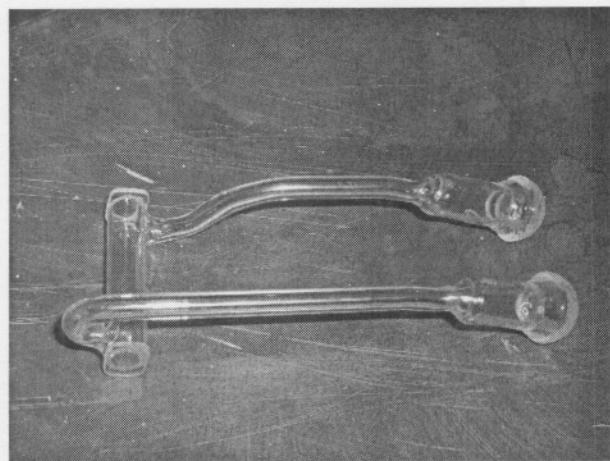
Maksimum 15 W, 12 V gelykstroom, 50 Hz volgens die spesifikasies.

- Osoonproduksie

Osoonproduksie is 250 mg/h.

3.6.5 Shimadzu Graphicord UV-240 en Ultrospec 3000 UV-sigbarelig-spektrofotometers

Die Shimadzu Graphicord UV-240 en Ultrospec 3000 is respektiewelik 'n dubbelstraal en enkelstraal UV-sigbarelig-spektrofotometer gebruik vir die direkte meting van osoonkonsentrasies.



Figuur 3.11 UV-spektrofotometervloeisel

Die UV-spektrofotometersel is van borosilikaatglas gemaak. 'n Kwartsvenster is aan weerskante van die kuvet geheg. Die weglengte van die kuvet is 4,37 cm. Die ontwerp van die UV-spektrofotometersel laat aaneenlopende gasvloeい en osoonkonsentrasievassetting toe. Die bal- en holte-verbindings word vasgeklamp om 'n lugdigte seël te bewerkstellig. Die verbindings vergemaklik konneksie en verwydering van die toe- en afvoerpype.

3.6.6 Fisher controls 2000 (RA 341620) en GEC Marconi-rotameters

Rotameters is gebruik vir die vassetting van toevoergasvloeい deur die osoongenerator.

3.6.7 Termokoppel

Die termokoppels KM457xP van Kane-May Ltd. is gebruik om die temperatuur van die gasstroom voor die osoongenerator en by die ontladingsgebied te meet.

3.6.8 Waters-foonchromatograaf

Die Waters 510-foonchromatograaf is met 'n Waters 430 geleidingsdetektor toegerus en lewer 'n chromatogram as aanduiding van foonkonsentrasie.

- Waters 510

Die Waters 510-eenheid bestaan uit die Waters-510-HPLC pomp met oplosmiddel afleweringsmodule 590, elektriese eenheid en datasisteem 840 vir die verwerking van die sein vanaf die detektor om 'n chromatogram te lewer. Die elektriese eenheid bevat die kontrolestellings van die foonchromatograaf.

- IC-Pak A HC-anionkolom

Die hoë kapasiteit IC-Pak A HC-anionkolom (komponentnommer WAT026770) met die volgende kenmerke is gebruik.

Afmetings: 4,6 x 150 mm

Partikelgrootte: 10 µm

Kapasiteit: $30 \pm 3 \text{ } \mu\text{g}/\text{cm}^3$

Pakkingsmateriaal is 'n polimetakrlaathars met 'n kwaternêre ammonium funksionele groep

Maksimum druk: 20 MPa (200 atm of 3000 psi)

Vloei: 2,0 cm³/min

- Filters

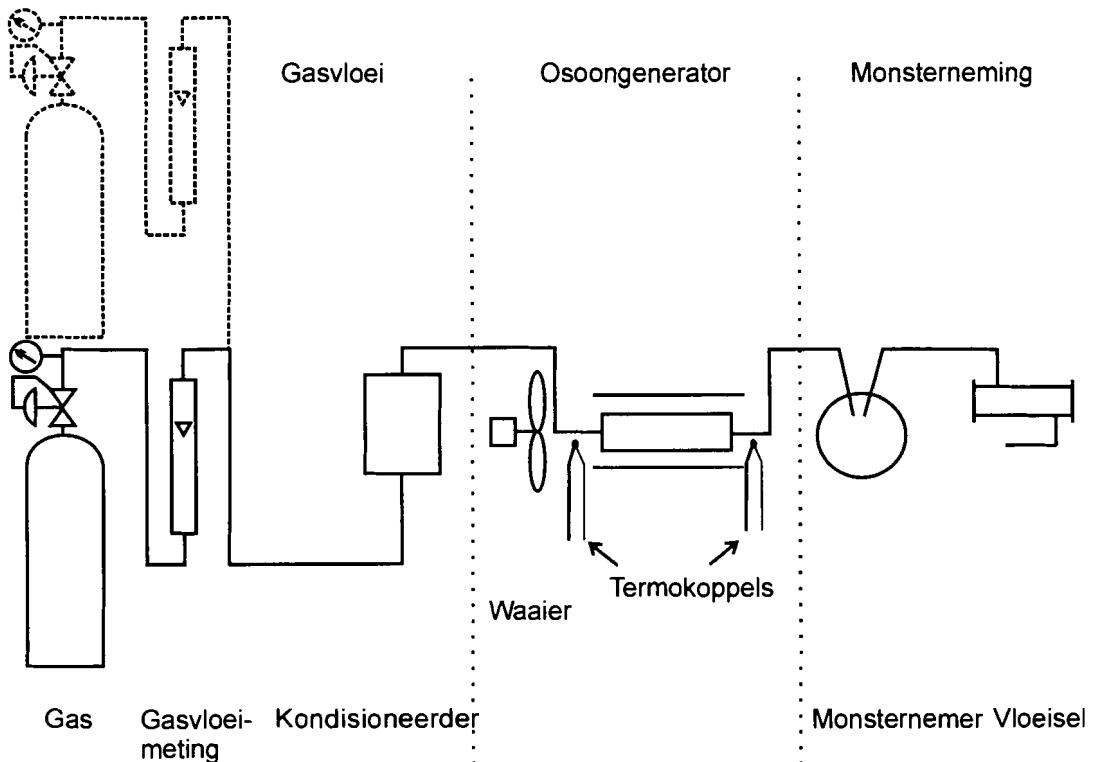
Durapore-membraan (0,22 µm) (katalogusnommer: GVWP) is gebruik om die eluant te filtreer.

- Waters 430-geleidingsdetektor

Die Waters 430-vloeisel bevat vyf elektrodes, naamlik twee detektorelektrodes, twee verwysingselektrodes en een aardelekrode. Met hierdie opstelling meet die detektor slegs die monsterione. Die Waters 430-geleidingsdetektor is 'n universele detektor.

3.7 Algemene apparaatopstelling en metode

Die volgende is 'n algemene apparaatopstelling vir die vervaardiging van osoon en meting van die gasstroom.



Figuur 3.12 Algemene apparaatopstelling

Gas

Gas is onder beheerde toestande deur 'n osoongenerator gestuur waarna die samestelling van die uitlaatgas ontleed is.

Die totale gasvloe deur die Sterizone[©] is met 'n rotameter voor die inlaat van die osoongenerator gemeet. Sintetiese lug, O₂, N₂ en CO₂ is afsonderlik of in samestellings vanaf die gasbron deur die osoongenerator gevoer. Waar samestellings van gasse gebruik is, is vir elke gas 'n bykomstige rotameter aangebring.

Gasvloeimeting

Die Fisher controls 2000 (RA 341620) en GEC Marconi-rotameters, gekalibreer met die Schlumberger no. 3773131 droëgasteller, is tussen die gasbron en die osoongenerator geïnstalleer.

Kondisionering van die toevoergas

Waar toepaslik is die gas deur water geborrel vir die byvoeging van waterdamp tot die toevoergas. Die temperatuur van die water is beheer deur die waterhouer te verhit of verkoel in 'n waterbad.

Die gas is deur 'n 700 cm lang spiraal van aluminiumpyp gevoer vir die verandering van die toevoergastemperatuur. Die temperatuur van die gas is beheer deur die aluminiumpyp te verhit of verkoel in 'n waterbad.

Die gas is deur 'n U-buis waarin verskillende kontaminante geplaas is, geborrel vir die byvoeging van kontaminante tot die toevoergas.

Bogenoemde kondisioneringsapparate is direk voor die termokoppel by die inlaat van die osoongenerator aangebring.

Osoongenerators

Buddy© en Ecozein© het ingeboude waaiers vir afkoeling, terwyl Sterizone© in 'n windtonnel geplaas is vir afkoeling. Die osoongenerator met verstelbare frekwensie is nie verkoel nie om die temperatuureffek van toenemende frekwensie te meet.

Buddy© en Ecozein© is onveranderd getoets om hul intrinsieke eienskappe vas te stel.

Sterizone© is gebruik om die invloed van veranderlike parameters op die osoongenerator te toets.

Temperatuurmeting van die gas

Die temperatuur van die gas is gemeet by die in- en uitlaat van Sterizone© deur middel van termokoppels.

Monsterneming

Monsterneming van die uitlaatgas geskied direk in die tweenekrondebolfles, naamlik die monsternemer, of in oplossing in die monsternemer.

Gasanalise

Inlyn UV-spektrofotometrie is vir voortdurenende osoonmetinge aangewend en enkelmonsters is vir ionchromatografie en nat metodes geneem.

'n Vloeiverdeler in die gaslyn is aangebring tussen die monsternemer en die vloeisel om te verhinder dat druk in die Sterizone© en vloeisel opbou.

Kondisies

In die onderstaande metodes is die omgewingstemperatuur en temperatuur van die gas by die inlaat en uitlaat van die osoongenerator gemeet. Osoongenerasie geskied by atmosferiese druk en die waterdampdrukwaardes is vanuit die literatuur verkry (Dennis, L. M., 1920: 411-412).

3.7.1 Berekeninge

3.7.1.1 Osoonkonsentrasie

Gebruiklike eenhede vir osoonkonsentrasie word ingesluit om berekeninge te vergemaklik (ANON, Ozone solutions, Inc, 2004: 1).

Osoonkonsentrasie is by standaardtemperatuur 0 °C (273,15 K) en druk van 1 atm (101,325 kPa).

In water $1 \text{ g O}_3/\text{m}^3 \text{ H}_2\text{O} = 1 \text{ dpm O}_3 \text{ in H}_2\text{O (per massa)}$

In lug per volume $1 \text{ g O}_3/\text{m}^3 \text{ lug} = 467 \text{ dpm O}_3 \text{ in lug (per volume)}$

$1 \text{ dpm O}_3 \text{ in lug (per volume)} = 2,14 \text{ mg O}_3/\text{m}^3 \text{ lug}$

In lug per massa $100 \text{ g O}_3/\text{m}^3 \text{ lug} = 7,8\% \text{ O}_3 \text{ in lug (per massa)}$

$1\% \text{ O}_3 \text{ in lug (per massa)} = 12,8 \text{ g O}_3/\text{m}^3 \text{ lug}$

In suurstof per massa $100 \text{ g O}_3/\text{m}^3 \text{ O}_2 = 6,99\% \text{ O}_3 \text{ in O}_2 \text{ (per massa)}$

$1\% \text{ O}_3 \text{ in O}_2 \text{ (per massa)} = 14,3 \text{ g O}_3/\text{m}^3 \text{ O}_2$

3.7.1.2 Die berekening van osoonkonsentrasie vir die jodometriese metode

Berekening 1 Osoonkonsentrasie (% O₃ v/v) met die formule van Gordon, S. A. et al. (2000: 13)

$$\text{dpm O}_3 = \text{cm}^3 \text{O}_3/\text{m}^3 = 4,10 \times 10^7 \cdot v_t [\text{S}_2\text{O}_3^{2-}]/v_0 \cdot T/P$$

waar

v_t : volume Na₂S₂O₃ in dm³

v_0 : volume gas in cm³

[S₂O₃²⁻]: 0,05 mol/dm³

T: 273,15 + t in K

P: Standaarddruk in atmosfeer

t: Temperatuur in °C

Berekening 2 Osoonkonsentrasie (% O₃ v/v) met die formule van Dennis, L. M. (1920: 181)

Resultate van berekening 1 stem ooreen met dié van berekening 2.

$$\% \text{ O}_3 \text{ v/v} = 112 \times n/v_0$$

waar

n: volume Na₂S₂O₃ in cm³

v_0 : volume gas by STD in cm³

3.7.1.3 Die berekening van osoonkonsentrasie en -produksie met die UV-absorbansie by 254 nm

Berekening 3 Osoonkonsentrasie (% O₃ v/v) met die UV-absorbansie by 254 nm

Berekening 3 is deurgaans gebruik vir die berekening van osoonkonsentrasie (% O₃ v/v).

$$100\% \text{ O}_3 \text{ by STD} = \frac{48}{22,4} = 2,143 \text{ g/L O}_3$$

Volgens die wet van Lambert-Beer is:

$$A = \epsilon dc$$

Dit is gebruiklik dat osoonhoeveelhede en ligabsorpsie van osoon in terme van die dikte van 'n ekwivalente laag suiwer osoon gegee word.

'n Een cm laag osoon by STD veroorsaak 'n absorbansie van 134 by 254 nm.

Die absorbansie-indeks van 134 is soos volg bereken:

$$\log(I_0/I_t) = L\sigma_{O_3}C_s/\ln(10) = 133,84$$

waar

L:	1 cm
σ_{O_3} :	$1,147 \times 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{molekule}$
C_s :	$2,69 \times 10^{19} \text{ molekule/cm}^3$

$$A^{254} \equiv 134 \equiv 2,1429 \text{ g/L O}_3$$

$$A^{254} \equiv 1 \equiv \frac{2,1429}{134} \equiv 0,0160 \text{ g/L O}_3$$

$$c (\text{mg O}_3/\text{cm}^3) = A^{254} \times 0,0160$$

'n Laag O₃ $\frac{1}{134}$ cm = 0,007463 cm dik by STD veroorsaak 'n absorbansie van 1.

Vir 'n tipiese druk van 658 mm Hg in Potchefstroom en 20 °C omgewingstemperatuur word die laag

$$0,007463 \times \frac{760}{658} \times \frac{293}{273} = 0,00925 \text{ cm dik.}$$

In 'n 1 cm kuvet verteenwoordig 'n absorbansie van 1 by 254 nm

$$\frac{0,00925}{1} \times 100 = 0,925 \% \text{ v/v O}_3.$$

'n 4,37 cm kuvet verteenwoordig 'n absorbansie van 1 by 254 nm.

$$\frac{0,00925}{4,37} \times 100 = 0,21167 \% \text{ v/v O}_3.$$

Die osoonkonsentrasieberkening met 4,37 cm kuvet is

$$\% \text{ v/v O}_3 = 0,21167 \times A^{254} \text{ by } 658 \text{ mm Hg en } 20^\circ\text{C}.$$

Berekening 4 Osoonkonsentrasie met die formule van Williams, S. et al. (2002: 998)

Berekening 4 lewer dieselfde resultate as berekening 3.

$$[\text{O}_3] = (2,303 A/\sigma_\lambda l) (P_{\text{FT}}/P_{\text{AC}}) (F_{\text{AC}}/F_{\text{FT}})$$

waar

- A: log absorbansie (basis 10) van die spektrofotometer
 σ_λ : absorbsiedeursnit vir O_3 by golflengte λ ($\text{cm}^2/\text{molekule}^{-1}$)
(vir 254 nm is $\sigma_\lambda 1,137 \times 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{molekule}^{-1}$)
l: absorpsiesellengte (cm)
 P_{FT} : druk in die vloeibuis
 P_{AC} : vloeiseldruk
 F_{AC} : totale vloeい deur die absorpsiesel
 F_{FT} : totale vloeい deur die vloeibuis

Berekening 5 Berekening van osoonproduksie (g O_3/kWh) met die UV-absorbansie by 254 nm

Gestel die osoonkonsentrasie by enige temperatuur en druk is $0,0160 \times A^{254}$ ($\text{mg O}_3/\text{cm}^3$), die vloeい van die toevoergas $192 \text{ cm}^3/\text{s}$, die kragverbruik van die osoongenerator 5W en die weglengte van die kuvet 4,37 cm, dan is die

$$\text{produksie O}_3 \text{ in g/kWh} = 3600 \times 0,0160 \times A^{254} \times 1000 / 4,37 \times 1000 \times 5 \text{ of}$$
$$\text{produksie O}_3 \text{ in g/kWh} = \text{vloeい} \times A^{254} \times 2,6362.$$

3.7.1.4 Die berekening van stikstofoksiedkonsentrasie en -produksie

Berekening 6 Die berekening van stikstofoksiedkonsentrasie

Die NO_x bestaan uit $\text{NO} + \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + 2 (\text{N}_2\text{O}_4 + \text{N}_2\text{O}_5)$.

Berekening van dpm NO_3^-

Area $\times 10^6$ (vanaf chromatogram) $\times c$ (vanaf NO_3^- -standaardgrafiek)/m (vanaf NO_3^- -standaardgrafiek)

Berekening van volume NO_x by STD

Gestel daar is 1,5 dpm NO_3^- in 'n 20 cm^3 watermonster dan is die volume NO_x by STD

$1,5 \text{ mg } \text{NO}_3^- \equiv 0,03 \text{ mg } \text{NO}_3^- \text{ in } 20 \text{ cm}^3 \text{ water} \equiv \frac{0,03}{62} \text{ mmol } \text{NO}_3^- \equiv \left(\frac{0,03}{62} \times 22,4 \right) \text{ cm}^3 = 0,011 \text{ cm}^3 \text{ by STD.}$

$$v^0 = v \times \frac{p - m}{760(1 + 0,00367t)} = 560 \times \frac{658 - 16,8341}{760(1 + 0,00367 \times 19,5)} = 440,88 \text{ cm}^3$$

$$\% \text{ NO}_x = \frac{0,011}{440,88} \times 100 = 0,0025$$

Berekening 7 Berekening van stikstofoksiedproduksie (g NO_x/kWh)

Gestel die massa NO₃⁻ in die monster is 1,318 × 10⁻⁵ g soos bepaal deur die ionchromatograaf, die volume gas 560 cm³, die vloei van die toevoergas 192 cm³/s en die kragverbruik van die osoongenerator 5W, dan is die

$$\text{produksie NO}_x \text{ in g/kWh} = 1,318 \times 10^{-5} \times 192 \times 1000 \times 3600 / 560 \times 5 = 3,2536 \text{ of}$$

$$\text{produksie NO}_x \text{ in g/kWh} = 1286 \times \text{vloei} \times \text{g NO}_3^-.$$

3.7.2 Jodometriese bepaling van osoonkonsentrasie

Die UV-spektrofotometriese bepalings is gekontroleer deur die jodometriese bepaling van osoon. Volgens Gordon, S. A. et al. (2000: 12) word die die jodometriese metode soos deur die U.S. EPA (U.S. environmental protection agency) gespesifieer, as verwysingsmetode gebruik vir die bepaling van osoon. Die jodometriese metode word nie in hierdie studie as hoofmetode vir osoonbepalings gebruik nie, omdat die nadele verbonde aan die metode in afdeling 2.4.2.2.1.1 genoem, die akkuraatheid van resultate beïnvloed.

Drie metodes is ondersoek.

- Geosoniseerde gas is aanvanklik vanaf Buddy© deur gaswasbottels met 3% KI daarin geborrel sonder koppeling aan die UV-spektrofotometer. Die aantal en soort gaswasbottels aan Buddy© gekoppel is verander om die effektiwiteit van osoonabsorpsie deur die 3% KI in die gaswasbottels te bepaal. Geosoniseerde gas is vanaf Buddy© teen verminderde of onveranderde vloei deur die 3% KI gevoer. Verskillende volumes 3% KI is in die gaswasbottels geplaas. Kleurverandering van die KI-oplossing is as maatstaf van osoonabsorpsie gebruik.
- Geosoniseerde gas is vanaf Buddy© deur die UV-spektrometersel en daarna deur twee gaswasbottels (in metode een as die mees effektiewe vasgestel) met 3% KI daarin gevoer. Die vrygestelde I₂ in die gaswasbottels is met 0,1 mol cm⁻³ natriumtiosulfaat getitreer.

Vasstelling van die omslagpotensiaal van die jodometriese titrasie is met die Metrohm Ag Herisau Deadstopgerät (tipe E297) gedoen. Laasgenoemde vasstelling lewer meer akkurate eindpuntbepalings as titrasies met die buret en styselindikator.

Wanneer geosoniseerde gas met verminderde vloeい vanaf Buddy© deur 3 gaswasbottels geborrel is, kleur die KI-oplossing in die eerste gaswasbottel liggeel, terwyl die tweede en derde oplossings onveranderd bly. Die osoon word volledig geabsorbeer in die eerste oplossing sonder jodiumverlies. Klein gasvolumes en kort reaksietye bemoeilik monsterneming, terwyl hoë O₃-konsentrasies en langer reaksietye (by die hoë vloeい van 155 cm³/s van Buddy©) afwykings in I₂-generasie veroorsaak. Wanneer toestande verander word sodat die gassirkulasie deur die KI-oplossing verbeter en sodoende beter vermenging van die O₃ en KI-oplossing verseker, verander die bedryfskondisies van Buddy©. Onder dié toestande kan die intrinsieke eienskappe van Buddy© nie getoets word nie.

Die bogenoemde twee apparaatopstellings is nie voldoende vir die bepaling van osoon in die Buddy©-gasstroom nie.

- Geosoniseerde gas is vanaf Buddy© deur die UV-spektrofotometersel en daarna deur die monsternemer gevoer. Daarna is 20 cm³ ongebufferde, neutrale 3% KI en 3 cm³ 1 mol cm⁻³ H₂SO₄ in die monsternemer geplaas. Die monsternemer is verseël en die reagense met die geosoniseerde gas gemeng deur die monsternemer te skud. Die vrygestelde I₂ in die monsternemer is met 0,1 mol cm⁻³ natriumtiosulfaat getitreer.

Laasgenoemde metode is gebruik vir die vasstelling van osoonkonsentrasie in gasmonsters.

Die volgende tabel bevat resultate wat verkry is deur die derde metode te gebruik.

Tabel 3.1 Vergelyking van osoonbepalings met behulp van die jodometriese en UV-spektrofotometriese metodes

UV-spektrofotometer (a)	Jodometries (b)	Relatiewe verskil (%) $\frac{(a - b)}{(a + b)/2} \times 100$	Q-waardes vir die relatiewe verskil
0.0166	0.0189	-12.958	0.319
0.0140	0.0136	2.899	
0.0165	0.0150	9.524	
0.0457	0.0412	10.357	
0.0472	0.0421	11.422	
0.0885	0.0784	12.103	
0.1001	0.0883	12.527	
0.1391	0.1218	13.262	
0.0792	0.0692	13.477	
0.1084	0.0947	13.491	
0.0730	0.0636	13.763	
0.1196	0.1035	14.433	
0.0423	0.0361	15.816	
0.0174	0.0148	16.149	
0.1899	0.1593	17.526	
0.0180	0.0145	21.538	
0.0131	0.0105	22.034	
0.0127	0.0101	22.807	
0.2030	0.1586	24.558	
0.0648	0.0439	38.454	
0.0656	0.0429	41.843	
0.0648	0.0359	57.398	
0.0654	0.0292	76.533	
0.0654	0.0246	90.667	0.410
Mediaan		15.1	
Gemiddelde relatiewe verskil		23.3	

Data is volgens toenemende relatiewe verskil gesorteer om uitskietdata te identifiseer.

Kondisies: Toevoergas is omgewingslug teen omgewingstemperatuur van 18 °C.

Die berekende Q-waardes vir die statistiese bepaling van uitskietwaardes met die Q-toets toon dat die uiterste waardes van die relatiewe verskil kleiner is as die tabelwaarde van 0,413 vir die 95% vertrouensvlak (Rorabacher, D. B., 1991:139). Daarvolgens is geen data uitskieters nie. Die vergelyking van die bepaling van die osoonkonsentrasie deur middel van die jodometriese en UV-spektrofotometriese metodes lewer 'n gemiddelde relatiewe verskil van 23,3% en die mediaanwaarde vir die relatiewe verskil is 15,1%. Die vloei van Buddy© is verander om osoonbepalings by verskillende konsentrasies met mekaar te vergelyk. Die O₃ % (v/v) van die jodometriese metode is deurgaans laer as dié van die UV-spektrofotometriese metode omdat I₂ vanuit die oplossing verdamp. (Bruin jodiumdamp is bo die oplossing gesien en geruik). Laasgenoemde is ook die rede vir die groot relatiewe verskil.

3.7.3 UV-spektrofotometriese bepaling van osoonproduksie

Die Suid-Afrikaanse wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993 skryf nie 'n metode voor vir die bepaling van osoonproduksie nie. Volgens Anon, Determination of ozone (2005: 1) is UV-spektrofotometrie die algemeen aanvaarbare metode. Grunwell, J. et al. (1983: 20) beveel UV-spektrofotometrie aan wanneer kontaminantvrye monsters geanalyseer word.

Daar is om bestaande redes asook redes genoem in afdeling 3.7.2 besluit om UV-spektrofotometrie te gebruik vir osoonbepalings.

Die geosoniseerde gas is vanaf die osoongenerator deur die UV-spektrofotometersel in die spektrofotometer gevoer en daarna deur die monsternemer. Die UV-absorbansielesing van die UV-spektrofotometer is gebruik vir die berekening van die osoonkonsentrasie.

Die meet van osoon in die gasstroom deur die UV-spektrofotometervloeisel laat osoon- en stikstofoksiedmeting op dieselfde gasmonster toe.

3.7.4 Ionchromatografiese bepaling van stikstofoksiedproduksie.

Twee metodes is ondersoek om stikstofoksiedproduksie te bepaal:

- Geosoniseerde gas is vanaf Buddy© teen vasgestelde tye deur 1; 5; 10 of 20 cm³ water wat in elk van twee gaswasbottels in serie gekoppel is, geborrel.
- Geosoniseerde gas is vanaf die osoongenerator deur die UV-spektrofotometersel en daarna deur die monsternemer gevoer. Daarna is 1 cm³ water in die monsternemer gespuit en die monsternemer verseël met glasproppe. Die geosoniseerde gas is met die

water gemeng deur die monsternemer vir een minuut te skud. Die eksperiment is herhaal met 5; 10 en 20 cm³ water.

Die eerste metode het die volgende tekortkominge:

Die % NO_x van die eerste na die tweede gaswasbottel toon nie 'n afnemende tendens nie, en duï daarop dat daar geringe absorpsie van NO_x in die eerste volume water plaasvind.

Die lugvloei van 155 cm³/s van Buddy© en 6 - 700 cm³/s van Sterizone© is te hoog vir volledige gasabsorpsie in die water in die gaswasbottels. Lae oordrag van NO_x in die water vind plaas omdat daar nie voldoende vermenging van die NO_x en water is nie. Hierdie metode lewer nie-herhaalbare resultate.

Wanneer die gasvloei verminder word om beter vermenging van die NO_x en water en langer kontakte te verseker, verander die vloei van die Buddy©. Onder dié toestande kan die intrinsieke eienskappe van die Buddy© nie getoets word nie.

Die tweede metode toon beter herhaalbaarheid van resultate en is deurgaans gebruik vir die bepaling van stikstofoksiedproduksie.

Die ionchromatograaf bied die voordeel dat alle ione teenwoordig in die monster gelyktydig onderskei kan word met die minimum voorbereidingstyd en chemikalieë. Die klassieke nat chemiese metodes van nitriet- en nitraatbepalings behels lang reaksietye en vereis 'n wye reeks chemikalieë.

Deeltjies is uit die eluant gefiltreer om te voorkom dat die ionchromatograafkolom verstop. Die kolom is teruggespoel en/of met gekonsentreerde eluant gespoel wanneer die druk wel bo die limiet van 200 atm gestyg het. Die ionchromatograaf skakel outomaties af wanneer die druk 200 atm bereik om skade aan die kolom te voorkom.

Die volgende apparaatstellings is vir die Waters 510-ionchromatograaf gebruik.

Eluantvloei: 2 cm³/min.

Maksimum druk: 20 MPa (200 atm of 3000 psi)

Detektor 430 geleidingstellings

versterkerstelling (gain) 0,01
fyn instelling soos nodig vir instelling van die basislyn
bestek (range) 500 µS
temperatuur 35 °C
polariteit +

Boraatglukonaat-eluantkonsentraat is verdun en gefiltreer deur 'n $0,22\mu\text{m}$ Durapore-membraan. Die agtergrondgeleiding van die eluant was $274 \mu\text{S}$.

'n Standaardgrafiek is opgestel van standaardoplossings van 2, 4, 10, 20 en 50 dpm NO_3^- , sodat NO_x -produksie daarvolgens bereken kon word.

Die kolomeffektiwiteit (N) is volgens die 4 dpm SO_4^{2-} -standaardpiek op die chromatogram bereken. Die Waters-handleiding meld die kolomeffektiwiteit as 1500, terwyl die berekende waarde 1542 is.

Die monster is in die 710B WISP-inspuittoestel gespuit met 'n spuitnaald. Die 710B WISP-inspuittoestel het 'n monsterlusvolume van $100 \mu\text{L}$.

Die datasisteem 840 verwerk die sein vanaf die detektor in die vorm van 'n chromatogram. Die stikstofoksiedproduksie van die osoongenerators word bereken deur piekintegrasie van die chromatogram van die ionchromatograaf.

3.7.5 Kwaliteitbeheer

- Die UV-spektrofotometerlesings is gekontroleer deur jodometriese vasstelling van die osoonproduksie.
- Die kuvet is so gemonteer dat geen ligverstrooiing van die ligbundel van die spektrofotometer waarneembaar was nie.
- Die selkompartement van die UV-spektrofotometer is verdonker.
- Ondersoek is ingestel na die teenwoordigheid van opgewekte spesies buite die ontladingsruimte. Met O_2 -gastoovoeging ná die ontladingsruimte in die N_2 -gasstroom word geen NO_x geproduseer nie. Met N_2 -gastoovoeging ná die ontladingsruimte in die O_2 -gasstroom word ook geen NO_x geproduseer nie. Opgewekte spesies verval buite die ontladingsruimte. Enige reaksie met gas in die osoongenerator vind slegs in die ontladingsruimte plaas.
- Die geosoniseerde gas is met $0,01 \text{ g/L} \text{ Na}_2\text{CO}_3$ i.p.v. water gemeng om vas te stel of NO_x ook volledig in neutrale en effe suur water oplos. Die NO_3^- -konsentrasies in die twee gevalle was dieselfde.

- Waswater van alle komponente van die apparaat is vir NO_3^- getoets en daar is NO_3^- op die binnewande van al die buise en glaskomponente gevind. Die apparaat is na elke eksperiment gewas en drooggemaak.
- Die silikoonrubberpypkonneksies moet so kort as moontlik wees, aangesien langer pype die NO_x in die monster met soveel as 61% kan verminder.
- Geosoniseerde gas vanaf die osoongenerator met sintetiese lugtoevoer is deur 'n mengsel van NO_2^- en NO_3^- -standaardoplossings geborrel, en 'n chromatogram met die ionchromatograaf verkry. Die NO_2^- -piek verdwyn en die NO_3^- -piek vergroot. Hieruit word afgelei dat osoon alle NO_2^- na NO_3^- oksideer. Die retensietye van die standaard en die analiet stem ooreen, dit wil sê die ion in die monster is NO_3^- .
- Kontrolering van berekeninge van osoonkonsentrasie met lesings van die UV-spektrofotometer. Die formule waarvolgens alle osoonkonsentrasies bereken is, lewer dieselfde antwoord as die formule van Williams, S. et al. (2002: 998).
- Kontrolering van berekeninge van osoonkonsentrasie met jodometriese lesings. Die berekening van die osoonkonsentrasie met die berekening van Dennis, L. M. (1920: 181) stem ooreen met dié van Gordon, S. A. et al., (2000: 13).
- Blanko lesings vir NO_x -bepalings is geneem van vars water direk van die MilliQ watersuiweringstoestel en met gasvloeい deur die watermonster maar met die osoongenerator afgeskakel. Daar is geen NO_x in dié monsters waargeneem nie.
- 'n Grafiek van nitraatstandaarde oor die verwagte konsentrasiereeks is tydens elke eksperiment opgestel en die NO_x -produksie daarvolgens bereken.
- Daar is by die onderste deteksielimiet van die ionchromatograaf gewerk wat onsekerheid in die piekintegrasie van die chromatogram meebring. Die resultate van konsentrasies onder 2 dpm toon hoe standaardafwykings, maar tendense van resultate kon bepaal word. Metinge wat enigsins verdag gelyk het is, herhaal. Die totale aantal metinge geneem was 700.
- Herhaalbaarheid is bepaal deur dieselfde monsters op verskillende dae te analyseer, en resultate van soortgelyke eksperimete met mekaar te vergelyk. Resultate van nitraatstandaarde (2,4 en 10 dpm NO_3^-) op verskillende dae is met mekaar vergelyk. Die resultate 2 dpm NO_3^- toon swakker herhaalbaarheid as dié van 4 en 10 dpm NO_3^- as gevolg van bogenoemde deteksielimiet.

- Die seisoenale kamertemperatuurwisseling van 20-27 °C het nie 'n beduidende invloed op die uitlaatgastemperatuur en O₃-produksie van die osoongenerator nie (sien tabel 3.15 en 3.16).

3.7.5.1 Die invloed van apparaatopstelling op die NO_x-bepaling

Die volgende maatreëls is gebruik om die betroubaarheid van die analise te vergroot:

- Osoon is baie reaktief en dissosieer met kontak met die komponente van die metingsinstrument, daarom is silikoonrubber of droë borosilikaatglas gebruik as gastoeroebuise en in apparaatopstellings.
- Die lengte van die silikoonrubberpypverbinding tussen die komponente van die apparaat is tot die minimum beperk omdat vasgestel is dat NO₃⁻-ione op die binne-oppervlak van die buise ophoop, selfs al is die buise nuut, skoon en droog. Die absorbsie van NO₂ in nat buise is so effektief dat feitlik al die NO_x in die buis as nitraat agterbly.
- Die buisdeursnit van 1,0 cm is regdeur die apparaatopstelling gebruik om die gasvloeい so min as moontlik te belemmer. Die glastoeroer- en afvoerbuise van die vloeisel is kleiner as 1,0 cm in deursnit, maar is deurgaans in die kalibrasie van die rotameters en eksperimente gebruik en is 'n konstante in die vloeibepalings.

3.7.6 Vergelyking van huishoudelike osoongenerators

Die osoonproduksie van Buddy© en Ecozein© is gemeet deur middel van die Shimadzu UV-spektrofotometer.

Die temperatuur van die uitlaatgas van Buddy© is gemeet deur middel van 'n termokoppel wat met 'n T-stuk in die gaslyn direk by die uitlaat van die osoongenerator aangebring is. Daarna is die geosoniseerde gas deur die vloeisel in die UV-spektrofotometer en monsternemer gevoer.

Die Ecozein© bevat nie 'n geslote vloeiruimte soos die Buddy© nie. Die hele Ecozein©-toestel is in 'n klokglas geplaas met laminêre gasvloeい oor die plaatjie. Daarna is die geosoniseerde gas deur die vloeisel in die UV-spektrofotometer en monsternemer gevoer en gewag tot 'n konstante lesing verkry is.

Twee metodes soos genoem in afdeling 3.7.4 is vir die bepaling van die stikstofoksiedproduksie van Buddy© en Ecozein© deur middel van die Waters-joonchromatograaf ondersoek.

Die tweede metode is gebruik vir die bepaling van stikstofoksiedproduksie.

Die O₃- en NO_x-produksie van van die Buddy©- en Ecozein©-osoongenerators is vasgestel en met mekaar vergelyk.

3.7.6.1 Osoon- en stikstofkonsentrasiebepalings van die Buddy©

Tabel 3.2 Osoon- en stikstofkonsentrasiebepalings van Buddy©

	O ₃ (% v/v)	NO _x (% v/v)	NO _x /O ₃ (%)
	0.013	0.0031	23.69
	0.014	0.0037	26.71
	0.014	0.0028	20.12
	0.013	0.0025	19.53
	0.013	0.0031	24.01
	0.014	0.0033	23.78
	0.014	0.0029	20.82
	0.014	0.0029	20.94
	0.014	0.0031	22.32
	0.017	0.0024	14.21
	0.017	0.0022	13.22
	0.013	0.0033	25.55
	0.014	0.0025	18.49
	0.014	0.0036	26.19
	0.014	0.0026	18.97
	0.017	0.0022	13.20
	0.016	0.0021	12.96
Gemiddeld	0.014	0.0028	20.28
Standaard afwyking	0.0014	0.00049	4.63

Kondisies: Toevoergas omgewingslug, omgewings-temperatuur 18 °C, atmosferiese druk 87 kPa, kragverbruik van die toestel: wisselstroom 230V, 39W, 0,17A, 50Hz, kragverbruik deur Sterizone© 5W, pulsfrekwensie 20 kHz.

3.7.6.2 Die osoon- en stikstofoksiedkonsentrasiebepalings van Ecozein©

Tabel 3.3 Die osoon- en stikstofoksiedkonsentrasiebepalings van Ecozein©

	O ₃ (% v/v)	NO _x (% v/v)	NO _x /O ₃ (%)
	0.011	0.0017	15.76
	0.011	0.0032	30.16
	0.011	0.0021	19.28
Gemiddeld	0.011	0.0023	20.00

Kondisies: Toevoergas omgewingslug, omgewingstemperatuur 18 °C, atmosferiese druk 87 kPa. Volgens spesifikasies is kragverbruik van die toestel maksimum 15 W, gelykstroom 12 V, frekwensie 50 Hz.

Tabel 3.4 Vergelyking van Buddy© met Ecozein©

Eienskap	Buddy©	Ecozein©
Ontladingsgaping (mm)	0.3	ongeveer 10
Kragverbruik (W)	39	15 maksimum
Toevoerspanning (V)	230 (wisselstroom)	12 (gelykstroom)
O ₃ -produksie (g/kWh)	28	20
NO _x -produksie (g/kWh)	7	4
Tipe ontlading	Volume	Koplanêr

- Bespreking van resultate

Daar is by die onderste deteksielimiet van die ionchromatograaf gewerk wat onsekerheid in die piekintegrasie van die chromatogram meebring, vandaar die standaardafwyking van 4,63 op die % NO_x/O₃-verhouding (sien tabel 3.2).

'n Gemiddelde osoon- en stikstofoksiedproduksie is vanaf die O₃- en NO_x-(% v/v) resultate bereken en op 28 en 7 g/kWh onderskeidelik is vir die Buddy© vasgestel (sien tabel 3.4).

'n Gemiddelde osoon- en stikstofoksiedproduksie van 20 en 4 g/kWh onderskeidelik, is vir die Ecozein© vasgestel (sien tabel 3.4).

Die gasvloeipatroon deur die Buddy© se osoniseereenheid verskil grootliks van dié van die Ecozein©-eenheid. By die Buddy© kan die gasmonster kwantitatief na die ontladingsruimte versamel word, terwyl op diffusie staatgemaak moet word in die geval van die Ecozein©-eenheid. Die monster is in die laaste geval dus veel ouer en gedeeltelike verval van osoon kon reeds plaasgevind het. Dis ook nie heeltemal seker of die lug in die klokglass volledig vermeng was nie. Dis dus raadsaam om nie te veel waarde aan klein verskille tussen die Buddy© en Ecozein© te heg nie. Beide eenhede produseer ongeveer dieselfde hoeveelheid osoon en die NO_x/O_3 -verhouding verskil ook nie drasties nie. Dit dui daarop dat dieselfde prosesse tydens osoonvorming plaasvind.

Die gemete NO_x -konsentrasie vanuit die Buddy©- en Ecozein©-osoongenerators van 0,002 % NO_x v/v (20 dpm) is sewe keer hoër as die beroepsdrempelwaarde (TBG BBd-Ad: sien bylae 4.3.3). Die konsentrasie van 3 dpm NO_2 in die omgewingslug sal bereik word indien die Buddy© vir 20 uur in 'n 75 m^3 (gemiddelde kantoor grootte) geslote vertrek aangeskakel is, onder normale humiditeitstoestande en in die afwesigheid van voorwerpe waarop nitrate kan neerslaan of wat met NO_2 reageer.

Die Buddy© en Ecozein© se osoon- en stikstofoksiedproduksie is afhanglik van die omgewingslugkwaliteit, en sal veral deur humiditeit (sien afdeling 3.8.2) en kontaminante (sien afdeling 3.8.4) beïnvloed word.

Resultate bevestig die feit volgens Eliasson, B. et al. (1984: L799) dat konvensionele oosoongenerators nie die hoeveelheid NO_x gegenereer, kan beheer nie.

Verdere toetse wat op Sterizone© uitgevoer is, is nie op die Buddy© en Ecozein© herhaal nie omdat die ontwerp van laasgenoemde twee oosoongenerators dié toetse onmoontlik maak.

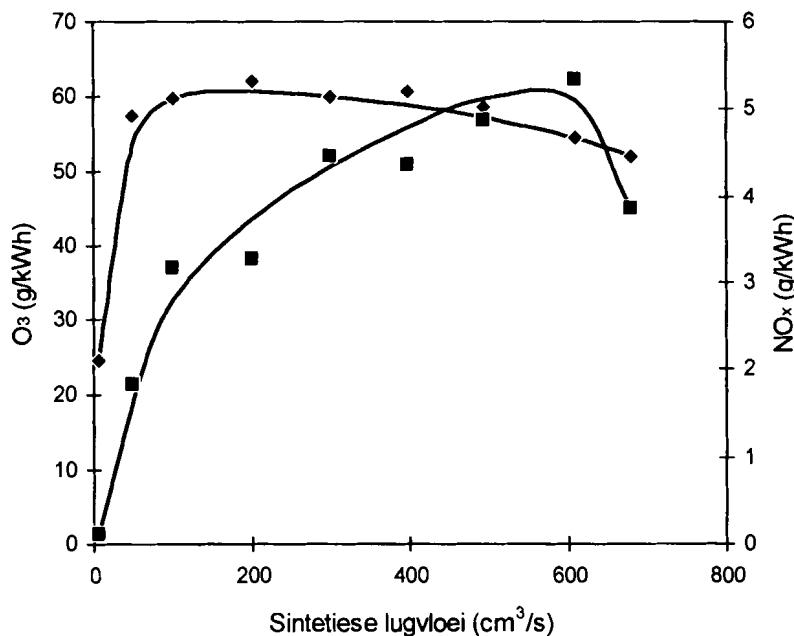
3.8 Invloed van bedryfsparameters op Sterizone©

3.8.1 Die invloed van sintetiese lugvloei op die osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©

- Gas is in die laboratorium na die rotameters aangelê deur middel van 'n aluminiumpyp met deursnit 1,0 cm.

- Fisher controls 2000 (RA 341620) en GEC Marconi-rotameters is voor die osoon-generator in die gaslyn geïnstalleer vir die toevoer van gas teen vasgestelde vloeい deur die osoongenerator.
- Die temperatuur van die inlaatgas van die osoongenerator is gemeet deur middel van 'n termokoppel wat met 'n T-stuk in die gaslyn direk by die inlaat van die osoongenerator aangebring is.
- Die temperatuur van die uitlaatgas by die ontladingsgebied van die osoongenerator is gemeet deur middel van 'n termokoppel wat met 'n T-stuk in die gaslyn direk by die uitlaat van die osoongenerator aangebring is.
- Die osoongenerator is in 'n windtonnel geplaas vir verkoeling.
- Die geoisoniseerde gas is eers deur die 560 cm³ monsternemer en dan deur die vloeisel in die Ultrospec 3000 UV-spektrofotometer gevoer. 10 cm³ water is gebruik om die NO_x in die fles op te vang.

Die volgende resultate is verkry met bogenoemde metode:

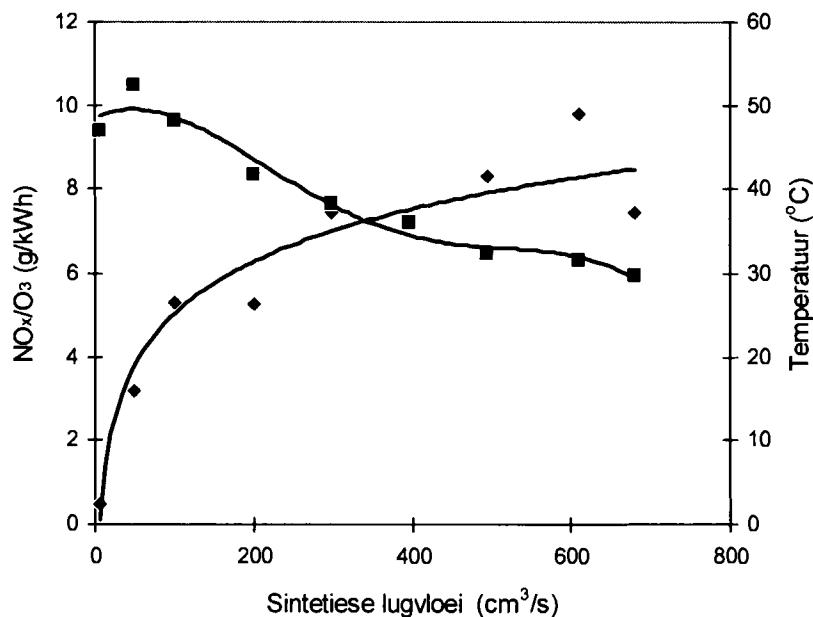


Figuur 3.13 Die invloed van sintetiese lugvloeい op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©
(◆ g O₃/kWh; ■ g NO_x/kWh)

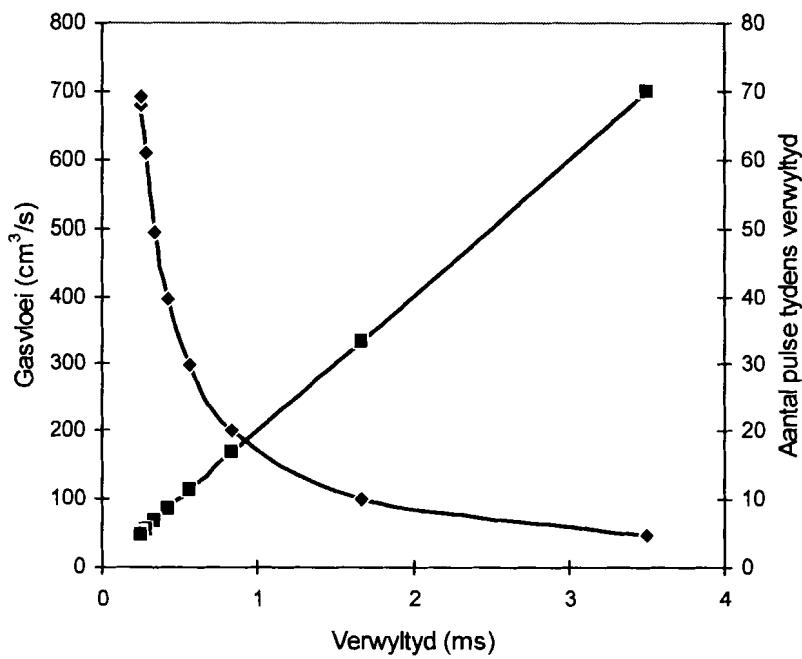
Tabel 3.5 Die invloed van sintetiese lugvloeい op NO_x/O₃-produksieverhouding deur Sterizone[©]

Sintetiese lugvloeい (cm ³ /s)	O ₃ (g/kWh)	NO _x (g/kWh)	NO _x /O ₃ (%)	Uitlaattemperatuur (°C)
6.29	24.5	0.12	0.48	47.0
48.2	57.5	1.84	3.2	52.4
101	59.8	3.18	5.31	48.1
201	62.0	3.28	5.29	41.7
299	59.9	4.46	7.44	38.2
397	60.7	4.37	7.19	36.1
495	58.7	4.88	8.30	32.5
609	54.6	5.33	9.77	31.6
680	52.0	3.86	7.43	29.7

Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, atmosferiese druk 87 kPa, omgewingstemperatuur 27,1 °C, kragverbruik 5W.



Figuur 3.14 Die invloed van sintetiese lugvloeい op NO_x/O₃-produksie en temperatuur van Sterizone[©]
(◆ % NO_x/O₃, ■ temperatuur °C)



Figuur 3.15 Verwyldtyd van gas in die ontladingsgaping van Sterizone®
 (◆ gasvloei; ■ pulse tydens beweging deur die gaping)

Tabel 3.6 Die invloed van suurstofvloeい op die osoonproduksie deur Sterizone

Suurstofvloeい (cm ³ /s)	O ₃ (g/kWh)	O ₃ -toename (%)
49	113.91	
101	118.89	
192	122.98	7.38

Kondisies: Suurstofvloeい, atmosferiese druk 87 kPa,
omgewingstemperatuur 20 °C.

- **Bespreking van resultate**

Die verwyltyd van die gas in die ontladingsruimte is 1 tot 4 ms. Volgens ontwerpspesifikasies word die volledige gas by enige redelike gasvloeい aan 'n aantal pulse (10 - 70) onderwerp. Osoonsintese neem volgens Pekárek, S. et al. 2002: 222 ongeveer 100 μs (sien figuur 3.4 en 3.15) wat ooreenstem met die waarneming dat geen aangeslane reaktiewe molekule of atome die osoongenerator verlaat nie. Daar kan dus aanvaar word dat die aangeslane spesies binne die ontladingsruimte by of minstens naby ewewig sal wees.

'n Toename in sintetiese lugvloeい van 48,2 tot 495 cm³/s verkoel die gasuitlaat van 52,4 na 32,5 °C, en veroorsaak 'n toename in die NO_x/O₃-produksieverhouding van 3,2 na 8,30% (sien tabel 3.5). Hitte-uitruiling met die omgewing veroorsaak 'n afname in die temperatuur van die uitlaatgas en lae osoonproduksie van 24,5 g/kWh as gevolg van die lae vloeい van 6,29 cm³/s. Die eerste data in tabel 3.5 is daarom nie te vertrou nie.

'n Toename in sintetiese lugvloeい van 495 tot 680 cm³/s verkoel die ontladingsgebied verder na 29,7 °C. Die O₃-produksie neem af van 58,7 na 52,0 g/kWh en die NO_x-produksie van 4,88 na 3,86 g/kWh. Die NO_x/O₃-produksieverhouding neem af in dié vloeigebied (sien tabel 3.5).

Die osoonproduktiwiteit by 6 cm³/s is besonder laag. Hierdie lae vloeitempo is vêr onder ontwerpspesifikasies en die elektrodes en die elektronika begin oorverhit. By hoër vloeitempo's stabiliseer die produksietempo tussen 50 en 60 g/kWh. Daar moet in gedagte gehou word dat die konsentrasies van aangeslane molekule, atome en ione by hoër vloeitempo's laer is as in die geval van lae vloeい. Reaksietempo's tussen hierdie hoë-energiespesies sal deur hoë konsentrasies meer bevoordeel word as die reaksietempo's tussen aangeslane spesies en gasmolekule in die grondtoestand. Die afwesigheid van 'n

groot konsentrasie-effek by die osoonproduksie toon dat reaksies tussen aangeslane spesies nie 'n beduidende rol in die osoonvormingsreaksies speel nie. Dit strook met die voorgestelde reaksieskemas. Die relatief geringe afname in osoonproduksie by hoë vloeい kan nie hiervolgens verklaar word nie.

In die geval van die stikstofoksiedproduksie is 'n sterk effek van vloeitempo waargeneem. Volgens die reaksieskema vir die vorming van stikstofoksiede behoort die vloeitempo, dit wil sê die konsentrasies van die aangeslane spesies soos in die geval van osoon, geen groot invloed op die stikstofoksiedproduksie te toon nie. Die toename in stikstofoksiedproduksie tot by vloeitempo's van $600 \text{ cm}^3/\text{s}$ kan nog nie verklaar word nie.

Die afkoeling by verhoogde gasvloeい behoort 'n hoér osoonproduksie te veroorsaak en 'n geringe invloed op die stikstofoksiedproduksie te toon. Teen alle verwagting het die NO_x/O_3 -verhouding met toenemende vloeい toegeneem. 'n Toename van NO_x ten koste van O_3 word in die algemene reaksieskema voorspel en dit kan bydra tot die waargenome afname in osoonproduksie by verhoogde vloeい.

Resultate vir osoonproduksie in suiwer suurstof in die vloeigebied van 49 tot $192 \text{ cm}^3/\text{s}$ toon 'n toename van 7,38% met Sterizone[©] (sien tabel 3.6). Dié resultate kom ooreen met die verwagte konsentrasie en temperatuureffek. Haverkamp, R. G. et al. (2002: 323) meld 'n toename van 20% in osoonproduksie ($80 - 100 \text{ g/kWh}$) met toenemende suurstofvloeい van $67-133 \text{ cm}^3/\text{s}$.

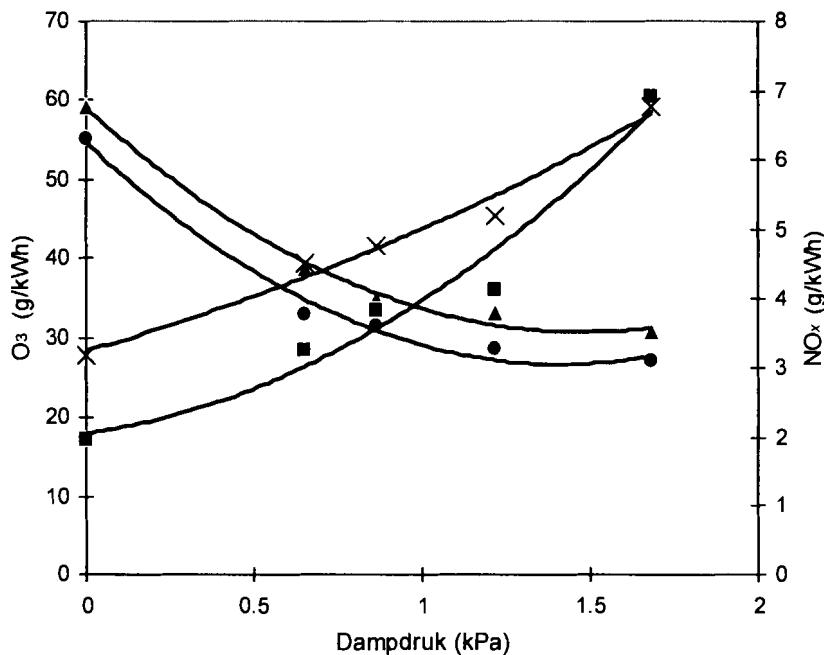
Die invloed van vloeい en die gepaardgaande afkoeling blyk meer kompleks te wees as wat die reaksieskemas voorspel en geen bevredigende verklaring vir die vloeい- tesame met afkoelingseffekte kan gegee word nie.

In afdeling 3.8.7 word die invloed van temperatuur onder konstante vloeい bespreek.

3.8.2 Die invloed van waterdampdruk op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone[©]

Apparaatopstelling is soos in figuur 3.12 met die insluiting van 'n waterdampgenerator na die rotameter, direk voor die eerste termokoppel. 'n 5L glashouer gevul met Milli-Q water en glasbuise 10 mm deursnee en 20 mm lank, is in 'n waterbad geplaas. Gas is van onder af deur die houer deur die water en glasbuisstukkies geborrel. Die temperatuur van die water in die houer is gemeet deur middel van 'n termometer in 'n T-stuk, aangebring aan die bokant van die houer. Die lug versadig met waterdamp is vanaf die bokant van die houer deur die T-stuk afgevoer na die osoongenerator. Die waterdampdruk van die toevoergas is gereguleer

deur die temperatuur van die toevoergas te verander deur die waterdampgenerator in 'n waterbad te plaas.



Figuur 3.16 Invloed van waterdampdruk op O₃- en NO_x-produksie deur Sterizone© by sintetiese lugvloeい 49.16 en 101.31 cm³/s

- O₃ g/kWh by sintetiese lugvloeい 49.16 cm³/s en waterdampdruk 0 - 1,7kPa
- ▲ O₃ g/kWh by sintetiese lugvloeい 101.31 cm³/s en waterdampdruk 0 - 1,7kPa
- NO_x g/kWh by sintetiese lugvloeい 49.16 cm³/s en waterdampdruk 0 - 1,7kPa
- × NO_x g/kWh by sintetiese lugvloeい 101.31 cm³/s en waterdampdruk 0 - 1,7kPa

Tabel 3.7 % O₃-produksie-afname en % NO_x-produksietename by droë sintetiese lugvloeい (101,31 cm³/s) en sintetiese lugvloeい (101,31 cm³/s) met waterdampdruk 0 en 1,7 kPa

	NO _x (g /kWh)	O ₃ (g /kWh)
Droë sintetiese lug met vloeい 101.3cm ³ /s	3.1782	59.82
Sintetiese lug by waterdampdruk 1,7 kPa en vloeい 101.3cm ³ /s	6.78	30.71
% Toename in NO _x -produksie		53
% Afname in O ₃ -produksie		48

Kondisies: Droë sintetiese lug met gasvloeい 101.3cm³/s, sintetiese lug by waterdampdruk 1,7 kPa en gasvloeい 101.3cm³/s, omgewingstemperatuur 20 °C, atmosferiese druk 87 kPa.

Tabel 3.8 % O₃-produksie-afname by suurstofvloeい 101,31 cm³/s met waterdampdruk van 0 tot 1,7 kPa

	O ₃ (g/kWh)
Droë O ₂ met 101,3 cm ³ /s vloeい	118,85
O ₂ met 101,3 cm ³ /s vloeい met waterdampdruk 1,7 kPa	97,21
% Afname in O ₃ -produksie	18

Kondisies: Droë suurstofvloeい 101,3 cm³/s, suurstofvloeい 101,3 cm³/s met waterdampdruk 1,7 kPa (dou punt 15 °C), omgewingstemperatuur 20 °C, atmosferiese druk 87 kPa.

- Bespreking van resultate

O₃-produksie

By sintetiese lugvloeい met waterdampdruk 1,7 kPa (dou punt 15 °C) deur Sterizone© verminder osoonproduksie met 48% in vergelyking met droë sintetiese lugvloeい (sien tabel 3.7).

By suurstofvloeい met waterdampdruk 1,7 kPa (dou punt 15 °C) deur Sterizone© verminder osoonproduksie met 18% in vergelyking met droë suurstofvloeい (sien tabel 3.8).

Hierdie resultate stem ooreen met dié van ANON, Lenntech ozone generation (2005: 3) naamlik dat by 'n dou punt van -10 °C, met suurstoftoevoer, die osoonopbrengs met 15% verminder. Met lugtoevoer is die vermindering 40%.

Die teenwoordigheid van waterdamp in die sintetiese lugstroom is verantwoordelik vir 59% van die osoonproduksieverlies en N₂ vir 41% van die osoonproduksieverlies. Hierdie syfers is in ooreenstemming met die reaksieskema in afdeling 2.4.1.10.4.

NO_x-produksie

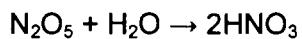
Die NO_x-produksie deur Sterizone© neem toe met toenemende waterdampdruk in die sintetiese lugtoevoer. Die toename van NO_x in sintetiese lug met waterdampdruk 1,7 kPa teenoor droë sintetiese lug is 53%. Hierdie persentasie NO_x is by 15 °C en sal waarskynlik styg onder warmer vogtige toestande (sien tabel 3.7 en figuur 3.16).

Indien die Buddy© gebruik sou word in 'n vogtige omgewing soos byvoorbeeld die sterilisasie van die omgewingslug in 'n badkamer of spa sal die Buddy© met 'n laer doetreffendheid, maar met 'n groter korrosierisiko bedryf word.

Die nadelige effek van vog op die werking van 'n osoniseerder is nie onverwags nie. Koronaontladings in vogtige lug gee genoeg energie om N₂, O₂ en H₂O te dissosieer. N₂, O₂ en H₂O se dissosiasie-energieë is 6.07, 6.0 en 5.1 eV onderskeidelik. OH• en H• word eerste gevorm en reageer nie verder in die ontladingsruimte om osoon te vorm nie. Volgens Piskarev, I. M. et al. (2004: 130) word die afname in osoonproduksie toegeskryf aan die reaksie van OH-radikale en opgewekte watermolekule met atomiese suurstof. Die osoon word verminder en die NO_x vermeerder deur die reaksies in afdeling 2.4.1.10.4 genoem. Die groot aantal reaksies betrokke by die vorming van NO_x verklaar die drastiese toename van NO_x in die uitlaatgasstroom onder vogtige toestande met lug as toevoergas.

Radikaalkonsentrasies in diëlektriese ontladings is so laag dat radikaal-radikaal-rekombinasies of termineringsreaksies feitlik nie plaasvind nie. Die addisioneel gevormde H•, OH• en HO₂• tree op as oksidante. OH• (2,8 V) het 'n veel hoër oksidasiepotensiaal as osoon (2,07V) (Kogelschatz, U., 2003:20).

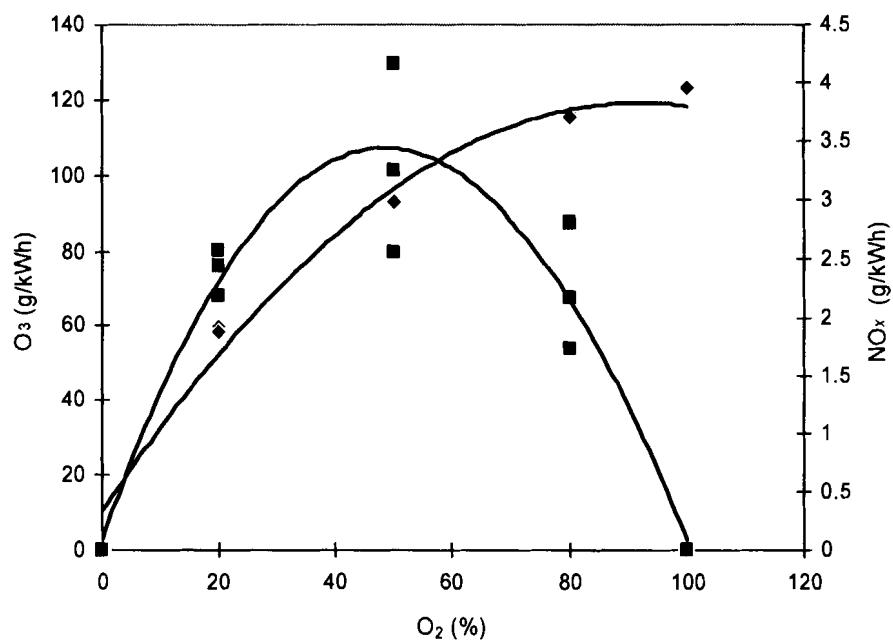
Water en N₂ verminder die atomiese suurstof om HNO₃ te vorm. Humiditeit in die toevoergas het 'n drastiese effek op die N₂O₅-konsentrasie. Selfs spore van vog (doupunkt van – 40 °C) verminder die N₂O₅ na nul volgens die reaksie



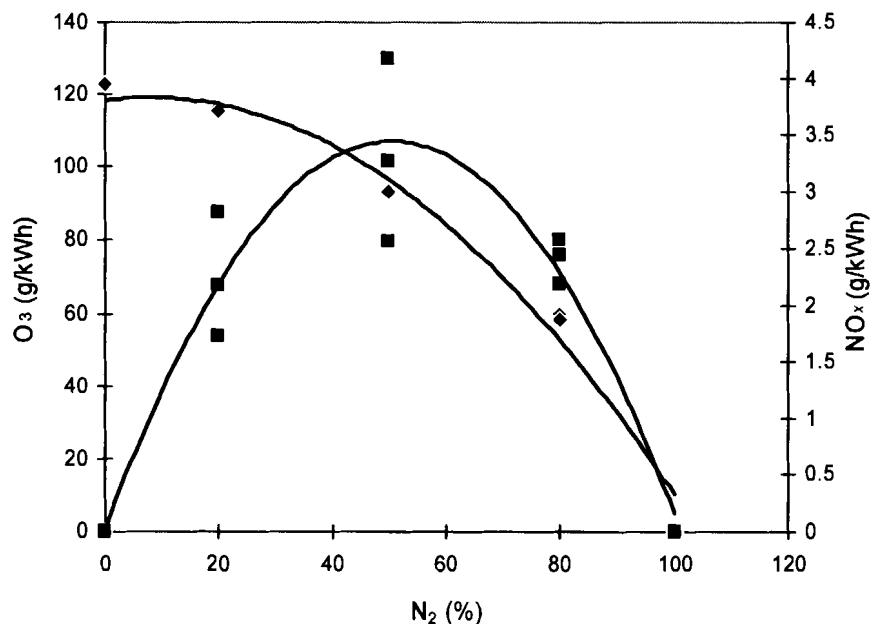
Korrosie deur salpetersuur kan dus ook in skynbaar droë toestande verwag word.

3.8.3 Die invloed van suurstof/stikstofverhouding van die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©

Apparaatopstelling is soos vir gasvloeい met die insluiting van twee rotameters met 'n vloeiverdeler voor die Fisher- en Marconi-rotameters om die O₂/N₂-verhouding te monitor. O₂, N₂ en mengsels van O₂ en N₂ is teen 'n vasgestelde gesamentlike vloeい van 192 cm³/s deur die osoongenerator gevoer.



Figuur 3.17 Die invloed van toenemende O₂ in die O₂/N₂-gastoovoer op die O₃- en NO_x-produksie deur Sterizone©
 (◆ g O₃/kWh; ■ g NO_x/kWh)



Figuur 3.18 Die invloed van toenemende N₂ in die O₂/N₂-gastoovoer op die O₃- en NO_x-produksie deur Sterizone©
 (◆ g O₃/kWh; ■ g NO_x/kWh)

- Bespreking van resultate

Die aanvanklike skerp toename in O₃-produksie is waargeneem en resultate stem ooreen met die onderstaande bevindinge van Skalny, J. D. et al. (2002: 34).

Die skerp toename en afname in NO_x kan toegeskryf word aan die onderstaande bevindinge van Skalny, J. D. et al. (2002: 34).

- Vrye elektrone speel 'n belangrike rol in die vorming van osoon. Wanneer N₂ teenwoordig is in die suurstoftoevoergas verhoog die vrye elektrondigtheid in die ontladingsgebied en lei aanvanklik tot 'n verhoging in die vorming van suurstofatome en osoon. 'n Eksperimenteel waargenome toename van die ontladingstroom as gevolg van die teenwoordigheid van N₂ in die suurstoftoevoergas bevestig die verhoging in vrye elektrondigtheid.
- Wanneer die stikstofkomponent van die suurstof-stikstofgasmengsel toeneem, word die afname in osoonproduksie toegeskryf aan die vermindering van die molekulêre suurstofkomponent en die verhoging in vrye elektrondigtheid.

3.8.4 Die invloed van kontaminante in die toevoergas op osoonproduksie deur Sterizone®

Apparaatopstelling is soos vir gasvloeい met die insluiting van 'n glas U-buis afgekoel in 'n waterbad, in die gaslyn direk voor die eerste termokoppel.

Etanol, xileen, huishoudelike paraffien en dieselbrandstof is gekies om die invloed van 'n alkohol, aromatiese en alifatiese kontaminant in die toevoergas op osoonproduksie deur Sterizone® te bepaal. Die stowwe is opeenvolgend in die U-buis geplaas. Die massa van die buis is voor en na die gasvloeい gemeet. Die buis is tot 2 °C verkoel en sintetiese lug is teen 101,31 cm³/s vir 60 sekondes oor elk van die genoemde kontaminante gevoer.

Met die vasstelling van die invloed van kontaminante op osoonproduksie is die volgende maatreëls getref om brand of ontploffing in die ontladingsruimte van die osoongenerator te voorkom:

- Sintetiese lug is in plaas van suurstof as toevoergas gebruik.
- Die stowwe is tot 2 °C verkoel sodat die plofgrens in lug nie oorskry word nie.

Tabel 3.9 Die invloed van kontaminante in die toevoergas op osoonproduksie deur Sterizone©

Kontaminant	Afname O ₃ -produksie (%)	Kontaminant in die sintetiese lug (% v/v)
Etanol	73.6	0.68
Xileen	62.5	0.12
Paraffien	47.5	0.045
Dieselbrandstof	18.9	0.0075

Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, vloei 101,31 cm³/s, atmosferiese druk 87 kPa, omgewingstemperatuur 24 °C.

- Bespreking van resultate

Die afname in osoonproduksie is in ooreenstemming met die bevindinge beskryf deur ANON, Lenntech ozone generation (2005: 3) dat organiese onsuiwerhede van 1% in die toevoerlug kan veroorsaak dat geen osoon gevorm word nie. Dis nie onverwags nie, aangesien die gekose organiese stowwe almal reduseermiddels is wat effektief met die oksiderende spesies in die ontladingsruimte sal kan reageer.

3.8.5 Die invloed van koolstofdioksied en waterdamp in die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©

Gasvloei is soos vir die waterdampdrukeksperiment met 'n mengsel van sintetiese lug en waterdamp. Koolstofdioksiedgas gevorm vanaf droë ys in 'n houer, is in die gaslyn gevoer voor die waterdampgenerator. Laasgenoemde is direk voor die eerste termokoppel van die Sterizone© geïnstalleer. Die vloei van die koolstofdioksied is met 'n rotameter gemeet.

Die gasmengsel is daarna deur die osoongenerator, monsternemer en UV-vloeisel gevoer.

Standaardchromatogramme is opgestel om die retensietye van mieresuur (HCOOH), karbonaat (CO₃²⁻), NO₂⁻, NO₃⁻, en SO₄²⁻ vas te stel. Die retensietye was 2.9; 3.4; 4.0; 8.0 en 20 minute onderskeidelik.

Die watermonsters en blanco bepaling is direk na die uitvoer van die eksperiment geanalyseer asook na 'n tydsverloop van 7 dae.

Tabel 3.10 Die invloed van koolstofdioksied en waterdamp in die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone©

Lugsamestelling	Vloei 101,3 cm ³ /s % CO ₂ 7,6 waterdampdruk 2,45 kPa		Vloei 201 cm ³ /s % CO ₂ 2,4 waterdampdruk 2,45 kPa	
	O ₃ -produksie (g/kWh)	NO _x -produksie (g/kWh)	O ₃ -produksie (g/kWh)	NO _x -produksie (g/kWh)
Sintetiese lug	59.82	3.18	61.98	3.28
Sintetiese lug+H ₂ O	30.71	6.78	32.85	7.00
Sintetiese lug+H ₂ O+CO ₂	25.64	5.59	28.08	5.59
Relatiewe % O ₃ -afname as gevolg van CO ₂	17		15	

Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, atmosferiese druk 87 kPa, omgewingstemperatuur 21 °C, kragverbruik 5W.

- Bespreking van resultate

Die watermonsters en blanko bepaling is direk na die uitvoer van die eksperiment geanaliseer en beide die chromatogramme toon karbonaatpieke. Die koolstofdioksied vorm dus die karbonaat in die monster.

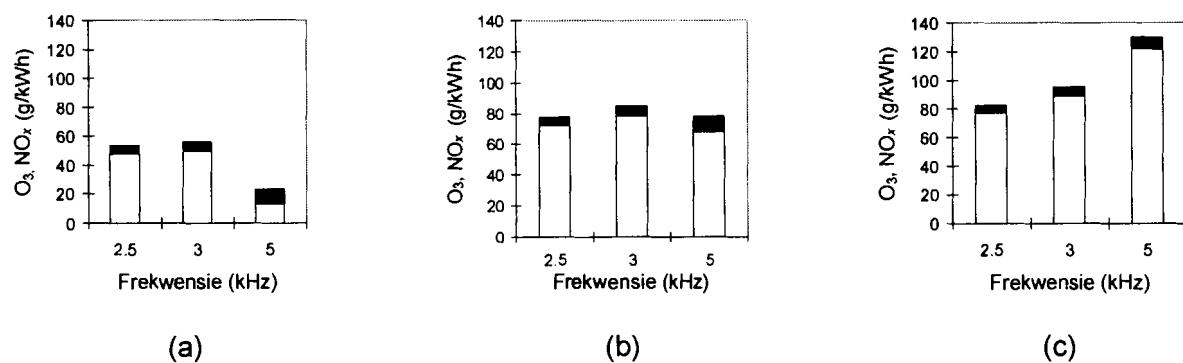
Die watermonsters en blanko bepaling is 7 dae na die eerste analise weer geanaliseer, of gekook en dadelik weer geanaliseer. Die karbonaatpieke is dan afwesig as gevolg van CO₂-diffusie uit die watermonsters, en die NO₃⁻-pieke bly onveranderd.

Wanneer die koolstofdioksiedkomponent in die lug toeneem van 2,4 na 7,6%, neem die karbonaatpiek 3x in grootte toe, maar die stikstofoksiedproduksie bly dieselfde. 'n Toename van 2,4 na 7,6% CO₂ in die lug lei tot 'n 1,7 tot 5,8% afname in die O₃-produksie.

- Hierdie resultate stem ooreen met dié van Skalny, J. D. et al. (2002: 32). Wanneer die koolstofdioksiedkomponent van die suurstof-koolstofdioksiedgasmengsel toeneem, word die afname in osoonproduksie toegeskryf aan die vermindering van die molekulêresuurstofkomponent en die verhoging in vrye elektrondigtheid.

3.8.6 Die invloed van frekwensie op osoon- en stikstofoksiedproduksie

Apparaatopstelling is soos vir eksperimente net met droë gas. Geen eksterne verkoeling is aangebring nie, omdat die effek van toenemende temperatuur as gevolg van toenemende frekwensie waargeneem moes word. Die elektronika van Sterizone[©] laat nie toe dat die frekwensie en pulswydte verander kan word nie. Die osoongenerator met koaksiale buiselektrodes en verstelbare frekwensie is vir hierdie eksperimente gebruik. Die geosoniseerde gas vloei eers deur die UV-spektrofotometervloeisel en daarna deur die monsternemer.



Figuur 3.19 **O_3 - en NO_x - produksie van die osoongenerator met verstelbare frekwensie by toenemende frekwensie en sintetiese lugvloei (a) 25.19, (b) 46.88 en (c) 70.48 cm^3/s**

■ g NO_x /kWh; □ g O_3 /kWh

Tabel 3.11 **Die effek van toenemende temperatuur en afnemende gasvloei op O_3 - en NO_x - produksie van die osoongenerator met verstelbare frekwensie**

Sintetiese lugvloei (cm^3/s)	Uitlaattemp. (°C)	O_3 -produksie (g/kWh)	NO_x - produksie (g/kWh)
25.19	85	13.28	10.31
70.48	48	121.52	8.72

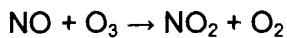
Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, atmosferiese druk 87 kPa, omgewingstemperatuur 26 °C, kragverbruik 5W, frekwensie van pulse 5 kHz.

- Die bespreking van resultate

Osoonproduksie neem af van 122 na 13 g/kWh en NO_x - produksie neem toe van 8.72 na 10.31 g/kWh by gastemperatuur van 85 °C en frekwensie van 5 kHz. Hierdie resultate stem

oor een met dié van Pekárek, S. et al. (2002: 222, 225) en Haacke, M. et al. (2002: 199, 200) naamlik dat verhoogde temperatuur lei tot vermindering in osoon- en vermeerdering in stikstofoksiedproduksie.

Die reaksietempo van die mees dominante osoonverlies-reaksie



neem toe met toenemende temperatuur en in besonder met toenemende temperatuur in die ontladingsruimte (Pekárek, S. et al., 2002: 225).

As die frekwensie van die osoongenerator verhoog terwyl die spanning konstant gehou word sal die krag toeneem en gevvolglik ook die temperatuur. Hoë temperatuur in die ontladingsruimte as gevolg van lae gasvloei bevoordeel die vorming van stikstofoksied en lei tot die vergiftigseffek soos vroeër beskryf. Hierdie osoongenerator met onvoldoende afkoelingsmeganismes produseer meer NO_x (6-10 g/kWh) as osoongenerators met afkoelingsmeganismes (2-5 g/kWh). Die resultate is in ooreenstemming met dié van Kogelschatz, U. et al. (1987: 200).

Dit is opmerklik dat hierdie resultate nie die uitsonderlike gedrag wat met die Sterizone® osoongenerator waargeneem is, weerspieël nie.

3.8.7 Die invloed van die temperatuur van die toevoergas op osoon- en stikstofoksiedproduksie deur Sterizone®

Apparaatopstelling is soos vir droë sintetiese lug met die insluiting van 'n spiraalvormige aluminiumbuis in 'n waterbad. Die temperatuur van die gas in die gaslyn word verander deur die temperatuur van die waterbad te verander. Die gaslyn in die waterbad is 700 cm lank om effektiewe temperatuurbeheer op die toevoergas toe te pas.

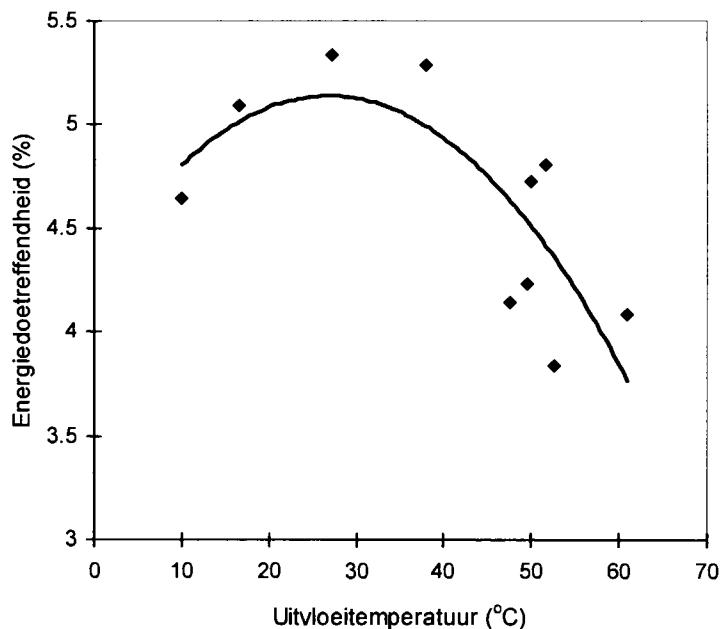
Die silikoonrubberpypverbinding tussen die waterbad en eerste termokoppel is so kort as moontlik gemaak en geïsoleer om temperatuurverandering van die gas in die pyp te voorkom.

- Resultate van toevoergasverkoeling van Sterizone©

Tabel 3.12 Toevoergasverkoeling van Sterizone©

Sintetiese lugvloeい (cm ³ /s)	Invloei temp. (°C)	O ₃ (g/kWh)	NO _x (g/kWh)	Uitvloei temp. (°C)	NO _x /O ₃ (%)	Energiedoel treffendheid (%)
25.190	18.1	50.1	2.27	47.7	4.54	4.14
25.190	28.5	49.4	2.47	61.0	5.01	4.08
101.31	9.90	64.0	2.56	37.9	4.00	5.29
101.31	39.8	58.2	3.68	51.7	6.34	4.81
200.96	6.20	64.6	3.76	27.1	5.83	5.33
200.96	47.2	57.2	5.32	47.9	9.31	4.72
397.00	1.20	61.7	2.31	16.6	3.75	5.10
397.00	54.6	51.2	3.57	49.6	6.97	4.23
609.39	-0.80	56.2	4.67	10.0	8.32	4.64
609.39	59.9	46.5	4.80	52.6	10.31	3.84

Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, omgewingstemperatuur 21- 23 °C, kragverbruik 5W.



Figuur 3.20 Die invloed van die uitvloei temperatuur op die % energiedoeltreffenheid van Sterizone©
(◆ % Energiedoeltreffenheid)

Tabel 3.13 O₃-produksietename en NO_x-produksie-afname met afnemende toevoergastemperatuur

Sintetiese lugvloei (cm ³ /s)	m O ₃ (g/kWhK)	m NO _x (g/kWhK)
25.19	-0.07	0.019
101.31	-0.02	0.038
200.96	-0.18	0.038
397	-0.20	0.024
609.39	-0.16	0.002

By konstante vloeい is

die gradiënt $m_{NO_x} = \Delta R_{NO_x} / \Delta T$ (g/kWhK) en

die gradiënt $m_{O_3} = \Delta R_{O_3} / \Delta T$ (g/kWhK),

waar R_{NO_x} en R_{O_3} onderskeidelik

die produksietempo van NO_x en O₃ is (sien tabel 3.12),

terwyl ΔT die verandering in temperatuur is (sien invloeitemperatuur in tabel 3.12).

Tabel 3.14 Die invloed van die tipe invloeigas op die uitlaatgastemperatuur van Sterizone[©]

Tipe invloeigas	Uitlaatgastemperatuur (°C)
Droë sintetiese lug	37-38
O ₂	37-38
N ₂	37-38
Droë sintetiese lug, O ₂ en N ₂ onderskeidelik met waterdamp	46-50

Kondisies: Gasvloeい: 192 cm³/s, omgewingstemperatuur: 21 °C.

Tabel 3.15 Die invloed van seisoenale kamertemperatuurwisseling op die uitlaatgastemperatuur en O₃-produksie deur Sterizone®: 1

Kamertemperatuur (°C)	Uitlaattemperatuur (°C)	O ₃ -produksie (g/kWh)
22.0	48.2	55.08
21.0	55.3	54.69
21.5	50.0	54.69
27.1	52.4	57.51
27.1	50.2	59.61

Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, lugvloeい 49.16 cm³/s, atmosferiese druk 87 kPa, omgewingstemperatuur 22-27,1 °C, kragverbruik 5W.

Tabel 3.16 Die invloed van seisoenale kamertemperatuurwisseling op die uitlaatgastemperatuur en O₃-produksie deur Sterizone®: 2

Kamertemperatuur (°C)	Uitlaattemperatuur (°C)	O ₃ -produksie (g/kWh)
20.0	42.5	58.22
20.0	42.1	59.29
22.0	45.4	61.43
27.1	48.1	59.82

Kondisies: Toevoergas sintetiese lug, lugvloeい 101.31 cm³/s, atmosferiese druk 87 kPa, omgewingstemperatuur 22-27,1 °C, kragverbruik 5W.

- Bespreking van resultate

By Sterizone® met volume-ontlading is temperatuurstyging by die oppervlakelekrode onvermydelik en dit verlaag sodoende die osoonproduksie. Die resultate is in ooreenstemming met dié van Haacke, M. et al. (2002: 201).

Die invloed van toevoergastemperatuur op osoon- en stikstofoksiedproduksie

Die verlaging van die temperatuur van die toevoergas lei tot verlaging van die temperatuur in die ontladingsgebied. Hierdie temperatuurverlaging lei tot die verlaging van die NO_x- en

verhoging van die O₃-produksie. Die % NO_x/O₃-produksieverhouding neem af. Hierdie resultate stem ooreen met dié van Wu, R. et al. (2003). Hierdie effek is optimaal tussen 100 en 400 cm³/s, wat ook die vloei van die Buddy© is (sien tabel 3.13).

Optimum O₃-produksie van 64 g/kWh en NO_x-produksie van 2,3 g/kWh (0,00151% NO_x v/v) word bereik met toevoergasvloei van 100-400 cm³/s toevoergastemperatuur van 1,2 - 9,0 °C (sien tabel 3.12). Hierdie resultate stem ooreen met dié van Wu, R. et al. (2003) en Kogelschatz, U. et al. (1987: 201,204).

Die NO_x-produksie van 2,3 g/kWh (0,00151 NO_x % v/v = 15,1 dpm) in die uitlaat van Sterizone© by 397 cm³/s droë lugvloei is 5x hoër as die beroepsdrempelwaarde van 3 dpm (0,0003% v/v) NO₂.

Die energiedoeltreffendheid van Sterizone© word nie verbeter met toevoergasverkoeling nie. Die NO_x-produksie bly steeds bo die beroepsdrempelwaarde van 3 dpm. Toevoergasverkoeling is volgens hierdie resultate nie 'n effektiewe manier om die NO_x-produksie deur Sterizone© te verlaag nie (sien figuur 3.20).

Invloed van inlaatgastemperatuur op die uitlaatgastemperatuur

In teenstelling met resultate van Haverkamp, R. G. (2002: 325) is gevind dat die temperatuur van die inlaatgas die uitlaatgastemperatuur beïnvloed. Met afgekoelde sintetiese lugvloei van 200 cm³/s teen 'n temperatuur van 6,2 °C word die uitlaatgastemperatuur verlaag van 41,7 na 27 °C (sien tabel 3.5 en 3.12).

Tipe invloeigas

Die uitlaatgastemperatuur is dieselfde vir die drie tipe invloeigasse naamlik droë sintetiese lug, droë O₂ en droë N₂ by omgewingstemperatuur 21 °C. Die teenwoordigheid van waterdamp in sintetiese lug, O₂ en N₂ verhoog in al drie die gevalle die uitlaatgastemperatuur van Sterizone© (sien tabel 3.14).

Seisoenale kamertemperatuurwisseling

Data in tabelle 3.15 en 3.16 is uittreksels uit temperatuurmetings tydens die uitvoer van eksperimente vir hierdie studie. Die seisoenale kamertemperatuurwisseling van 20-27 °C het nie 'n beduidende invloed op die uitlaatgastemperatuur en O₃-produksie van die osoongenerator nie.

3.8.8 Die vasstelling van die teenwoordigheid van reaktiewe spesies buite die ontladingsruimte van Sterizone[©]

Apparaatopstelling is soos vir eksperimente met droë sintetiese lug met die insluiting van 'n toevoergaslyn met rotameter by die uitlaat van die osoongenerator.

Tabel 3.17 Die vasstelling van reaktiewe spesies buite die ontladingsruimte van Sterizone[©]

Soort gas ingelaat (gasvloeい 200 cm ³ /s)	Soort gas by uitlaat bygevoeg (gasvloeい 25 cm ³ /s)	NO _x in monsternemer waargeneem (%)
O ₂	N ₂	0
N ₂	O ₂	0

- Bespreking van resultate

Met suurstofvloeい van 200 cm³/s en toevoeging van stikstofgasvloeい van 25,19 cm³/s by die uitlaat van die osoongenerator en omgekeerd word geen NO_x in die gasstroom waargeneem nie.

Hierdie resultate stem ooreen met bevindinge van Gibalov, V.I. et al. (2003: 439) naamlik dat teen lae osoonkonsentrasies met suurstof as toevloeigas elke suurstofatoom na osoon omgeskakel word.

Opgewekte spesies verval buite die ontladingsruimte, daarom sal reaksies met toevoergas in die osoongenerator slegs in die ontladingsruimte plaasvind. Geen verdere NO_x word deur gegenereerde osoon in die omgewing van die osoongenerator gevorm nie.

3.8.9 Die invloed van die lengte van silikonrubberpypkonneksies op die NO_x in die uitlaatgas van Sterizone[©]

Verskillende lengtes silikonrubberpyp (0; 5; 50 en 100 cm) is as uitlaat vir Sterizone[©] gebruik.

Tabel 3.18 Die invloed van die lengte van silikoonrubberpypkonneksies op die NO_x in die uitlaatgas van Sterizone®

Silikoonrubberpyplengte (cm)	NO _x -vermindering (%)	O ₃ -produksie (g/kWh)
0.5		56
50	34	56
100	61	56

Kondisies: Sintetiese lugvloeい 30,0 cm³/s, atmosferiese druk 87 kPa,
omgewingstemperatuur 21 °C.

- Bespreking van resultate

Daar is vasgestel dat langer uitlaatsilikoonrubberpype die NO_x in die geosoniseerde uitlaatgas van Sterizone® verminder. 'n Lae vloeitempo van 30 cm³/s is gebruik om 'n lang verwyltyd in die pyp te verseker.

NO_x is aan die binnewande van die uitlaatsilikoonrubberpype aangetref met die uitvoer van kontrole-eksperimente. Daar is ook vasgestel dat langer uitlaatsilikoonrubberpype die NO_x in die monster verminder. Daar is gevind dat die halfleeftyd van osoon in silikoonrubberpype ongeveer 14 minute is (Dohan, J. M. et al., 1987: 320, 330). Die gevormde osoon sal nie deur die uitlaatpyp verminder word nie aangesien die geosoniseerde gasvloeい in die pyp ongeveer 160 cm³/s is.

4 Projekevaluering

Die invloed van die bedryfsparameters op die osoon- en stikstofoksiedproduksie van wisselstroom osoongenerators is suksesvol gemeet. Die resultate het grootliks met dié van vorige navorsers ooreengekom en die Sterizone[©]-osoongenerator vertoon vergelykbare eienskappe met dié van ander osoongenerators met soorgelyke werkswyse.

Alhoewel die lae nitraatkonsentrasies groot standaardafwykings vir NO_x-bepalings veroorsaak het, was die tendense wat waargeneem is nuttig. Die groot standaardafwykings het veroorsaak dat baie eksperimentreeks herhaal moes word, wat uiters tydrowend was. (Waar enigsins die geldigheid van resultate betwyfel is, is die eksperiment herhaal en 700 nitraatbepalings moes uitgevoer word om die data te versamel.)

Hierdie ondersoek gee duidelike riglyne vir die optimale gebruik van huishoudelike osoongenerators, naamlik

- die osoongenerator moet in 'n goed geventileerde deel van 'n vertrek gebruik word om gebiede met te hoë osoon-en stikstofoksiedvlakke te voorkom,
- osoongenerators moet nie bedryf word terwyl personeel in die vertrek werksaam is nie,
- die osoongenerator moet nie in 'n klam omgewing bedryf word nie en
- organiese dampe verlaag die osoonproduksie van die osoongenerator drasties en moet vermy word.

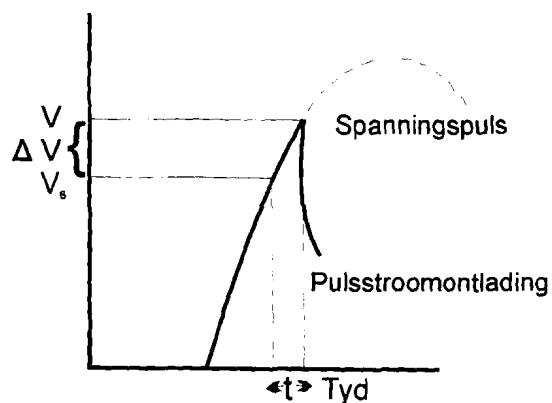
Afkoeling van die toevoergas is nie kostedoeltreffend om die effektiwiteit van die osoongenerator te vergroot nie. Die verhittingseffek in die korona-ontlading oorskadu die verkoeling van die toevoergas.

Die ontwikkelaars van die Sterizone[©]-osoongenerator het gepoog om met groot spannings-stygtye en optimale spannings suurstof selektief in teenwoordigheid van stikstof aan te slaan. In die lig van die aanslaningsenergieë van N₂ en O₂ was dit nie onverwags dat die poging om slegs O₂ aan te slaan, nie suksesvol was nie. Die poging om osoon met ultrakort pulse te vervaardig, blyk wel die regte werkswyse te wees.

Volgens Llewellyn-Jones, F. (1957: 128) is daar 'n tydvertraging, $\langle t \rangle$ tussen die bereiking van die ionisasiespanning, V_s en die begin van die ionisasieproses. In dié tyd, wat 'n

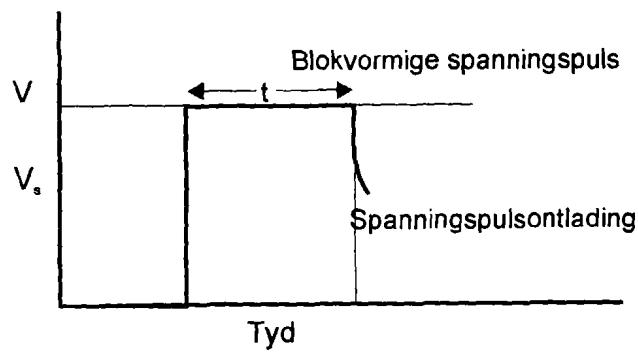
statistiese verspreiding toon, styg die spanning verder tot V. Aangesien die dissosiasie-energielakte van suurstof en stikstof so naby mekaar lê, word die aanslaningsenergie van stikstof vinnig bereik. Die korona-ontlading kan slegs plaasvind as die dissosiasie-energie van die gasmolekule oorskry word en elektrone in die gas so versnel word dat verdere ionisasie deur elektronbotsings plaasvind. Sodra die korona-ontlading begin, daal die spanning, maar dan is die elektronenergie reeds so groot dat beide suurstof en stikstof aangeslaan word.

Bogenoemde effek word tydens pulsstroomontlading soos in figuur 4.1 voorgestel, waargeneem.



Figuur 4.1 Pulsstroomontlading

Dieselde prosesse vind plaas as 'n blokvormige spanningspuls gebruik word. Ook hier moet 'n groter spanning as die statiese ionisasiespanning aangebring word voordat die ontlading deur die gas plaasvind soos gesien kan word in onderstaande figuur. Sodra die ontlading begin, val die spanning vinnig wat uiteindelik tot ossillerende ontladings lei.



Figuur 4.2 Blokvormige spanningspuls

Die statistiese aard van die tydvertraging voordat korona-ontlading plaasvind, is die gevolg van die spontane vrystelling van elektrone in 'n gas. Gasse is goeie isolators en sonder spontane vrystelling van elektrone sal geen korona-ontlading kan plaasvind nie. Hierdie spontane vrystelling van elektrone is 'n lukrake proses sodat die aanvangs van die korona-ontlading nie presies voorspel kan word nie. Daar is proefondervindelik vasgestel dat die korona-ontlading vinniger by spanningspulse met vinnige stygtye plaasvind as wat statisties voorspel word.

Volgens die meganisme van gasontlading is dit nie moontlik om suurstof selektief met hoëspanningpulse aan te slaan nie.

4.1 Voorstelle vir die beheer van NO_x

Die vorming van stikstofoksiede kan volledig vermy word as die osoniseerenheid met stikstofvrye suurstof bedryf word. Weens die hoë koste van suiwer suurstofgas en die ongerief van die hantering van hoëdruk suurstofsilinders is hierdie nie prakties vir huishoudelike gebruik van osoon nie.

Aangesien die vorming van stikstofoksiede in die ontladingsruimte van bestaande osoongenerators nie voorkom kan word nie, moet die gevormde stikstofoksiede na die ontladingsruimte uit die gasstroom verwijder word. Stikstofoksiede is oksideermiddels en reageer as sure. Reduseermiddels kan nie gebruik word om dié oksiede te verwijder nie omdat osoon tegelykertyd vernietig sal word. Verder neem die leeftyd van osoon bokant pH 5 vinnig af (Hahn, J., 1993: hfst 3) sodat sterk basiese reagense nie geskik sal wees om stikstofoksiede met 'n suur-basisreaksie in geosoniseerde gas te verwijder nie. Salpetersuur vorm as stikstofdioksied in 'n osoonyke gas oplos. Dit is 'n sterk suur wat geradelik in 'n absorbens by pH 3 in oplossing bly terwyl osoon by hierdie pH bestendig is.

Die diffusietempo van gasse teen die rigting van die gasstroom is nie weglaatbaar nie sodat lae vlakke stikstofoksiede en osoon ook voor die ontladingsruimte teenwoordig sal wees. Enige vog, geadsorbeer of vry, sal dan tot verhoogde korrosie lei. Die binnekant van die osoniseerenheid moet deur hoë kwaliteit anodisering beskerm word as vlekvrye staal weens kosteaspekte nie gebruik kan word nie (Itoh, H. et al., 2001: 82). Verder moet die elektroniese komponente met 'n dun laag beskermende vernis bedek word om korrosie te vertraag.

4.2 Voorstelle vir verdere ondersoek

'n Groot leemte in hierdie ondersoek was die lae betroubaarheid van stikstofoksiedmetinge.

'n Beter analitiese metode vir NO_x -meting in die dele per miljoen vlakke en laer in 'n osoonryke gas is gebiedend noodsaaklik.

'n Verdere moontlike studieveld is die ondersoek van die virtuele fotonveld as gevolg van die unieke vinnige aanskakeling van die elektriese veld soos dit in die Sterizone®-eenheid plaasvind. Indien die virtuele fotonenergie groter as $E = hc/\lambda_{\text{maks}}$ ($\lambda_{\text{maks}} = 250 \text{ nm}$) is, sal die O_2 dissosieer na atomiese suurstof. Volgens Ma, H. (2003: 128) is daar nog nie modelle vir die vorming van osoon in pulsstroomplasma nie. Die teoretiese beskrywing op hierdie vlak sal dit moontlik maak om die optimale doeltreffendheid vir osoonvervaardiging te voorspel. Verder kan die laagste moontlike NO_x/O_3 -verhouding bereken word. So 'n model sal rigtinggewend wees vir die ontwikkeling van verdere hoëfrekwensie osoongenerators.

'n Ondersoek na 'n prakties bruikbare absorbens wat NO_x verwys maar nie osoon vernietig nie, behoort geloods te word. 'n Gesikte voorlopige patent word voorberei.

As alternatiewe metode kan die invloed van ultravioletbestraling van die ontladingsruimte bestudeer word. Die bestraling sal die elektrondigtheid in die ontladingsruimte weens foto-elektriese emissie vanaf die elektrodes en fotodissosiasie van die gasmolekule verhoog. Die hoër elektrondigtheid sal die oorspanning waarby korona-ontlading begin, laat daal wat kan mee help om die fraksie aangeslane stikstof te verlaag. Op dié wyse sal die vorming van stikstofoksiede nie vermy kan word nie, maar moontlik tog verlaag word.

4.3 Bylae

4.3.1 Bylae vir spektroskopiese notasie van elektroniese oorgange van O₂ en N₂

Molekule kan energie absorbeer en veranderinge in hul rotasie-, vibrasie- en elektroniese energie ondergaan. Die verandering in elektroniese energie behels die oorgang tussen elektroniese vlakke. Die elektroniese rangskikking van die molekuul as geheel word gekarakteriseer deur twee hoeksmomentums langs die interkernas:

- Die netto orbitaalhoeksmomentum langs die interkernas.
- Die netto elektroniese spinhoeksmomentum langs die interkernas.

Die grondtoestand van O₂ word aangedui as X ³Σ_g⁻, terwyl een van die opgewekte toestande van O₂ as A ³Σ_u⁺ aangedui word. Dié van N₂ is X ¹Σ_g⁺ en B ³Π_g onderskeidelik.

- X dui die grondtoestand van 'n molekuul aan.
- a, b, c... en A, B, C... dui die opgewekte toestande van 'n molekuul aan.
- Oorgange word as A-X, B-X, ... aangedui.
- Elektroniese oorgange word as A ³Σ_u⁺ - X ³Σ_g⁻ aangedui.
- As die netto orbitaalhoeksmomentum (Λ : lamda) langs die interkernas van 'n diatomiese molekuul 0, 1, 2,... is, word die termsimbool Σ (sigma), Π (pi), Δ (delta),... gebruik. Vir $\Lambda = 0$ en Σ is die elektronwolk silindries simmetries om die interkernas. Die termsimbole vir die Λ -waardes is die Griekse ekwivalente van die ooreenstemmende hoofletters wat gebruik is met betrekking tot die L-waardes vir atome. (S=0, P=1, D=2, F=3 byvoorbeeld O (³P) en O (¹D)).
- Die boskrif voor die Σ , Π , Δ ,... is die netto elektroniese spinhoeksmomentum langs die interkernas en gee die multiplisiteit van die toestand.
- Vir homokernige molekule soos O₂ en N₂ word die netto simmetrie as g (gerade) aangedui as die elektroniese toestand en die aantal elektrone ewe is. As 'n inversie simmetriekoperasie geen verandering in teken meebring nie, is die molekuul simmetries ten opsigte van inversie.
- Die netto simmetrie word as u (ungerade) aangedui as die elektroniese toestand en die aantal elektrone onewe is. Inversie bring wel 'n verandering in teken mee.

- Simmetrie of anti-simmetrie teenoor 'n loodregte vlak (σ_v -vlak) op die molekulêre as word as $^+$ of $^-$ aangedui. $^+$ dui op geen verandering van teken met weerkaatsing in die σ_v -vlak en $^-$ dui op verandering van teken met weerkaatsing in die σ_v -vlak (weerkaatsing parallel met die molekulêre as).
- In die geval van $O_2^- X \ ^3\Sigma_g^-$ is daar twee π -orbitale, twee ongepaarde elektrone met g-simmetrie en verandering in teken met weerkaatsing in die σ_v -vlak. Die π -elektrone is in orbitale reghoekig met die molekulêre as en dra nie by tot die hoeksmomentum langs die as nie, dus is $\Lambda = 0$ en die toestand is 'n Σ toestand, dit wil sê vir die grondtoestand van O_2^- is die termsimbool $X \ ^3\Sigma_g^-$ (Laidler, K. J. et al., 1982: 546, 553, 612, 613).

4.3.2 Bylae vir afkortings en verduideliking van terme

dpmv: In atmosferiese chemie en lugbesoedelingsregulasies word die dele per miljoen gevolg deur ν om dele per miljoen O_3 in terme van volume aan te dui, byvoorbeeld dpmv O_3 in omgewingslug.

Dissosiasiekoëffisiënt: Stel elektrone in 'n klein elektronstroom, I_0 word in 'n sterk elektriese veld E oor 'n afstand d versnel totdat ionisasie van die gasmoleküle plaasvind. Die stroom styg dan tot I binne pikosekondes. Die dissosiasiekoëffisiënt α word dan gedefinieer volgens

$$\ln \frac{I}{I_0} = \alpha d \quad (\text{Llewellyn-Jones, F., 1957: 50})$$

E/n : Die ioniese mobiliteit (μ) is 'n funksie van E/n waar E die veldsterkte in V/cm en n die Loschmidt konstante (die aantal moleküle cm^{-3} by standaardtemperatuur en -druk = $2,69 \times 10^{19}$ moleküle cm^{-3})

Td: Die eenheid van E/n is die townsend (1 Td = 10^{-17} Vcm^2)

4.3.3 Bylae vir Suid-Afrika: Wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993

Die wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993 se regulasies vir gevaaarlike chemiese substansies beveel die volgende drempelwaardes aan vir tydsbeswaarde gemiddelde beroepsblootstelling (8 uur) en korttermynberoepsblootstelling (15 minute).

Verbinding	Formule	TBG BBd-Ad		Korttermyn BBd-Ad	
		dpm	mg/cm ³	dpm	mg/cm ³
Osoon	O ₃	0.1	0.2	0.3	0.6
Salpetersuur	HNO ₃	2	5	4	10
Stikstofdioksied	NO ₂	3	5	5	9
Stikstofoksied	NO	25	30	35	45

TBG BBd-Ad: Tydsbeswaarde gemiddelde beroepsblootstellingsdrempel-aanbevole drempel (8 uur).
Korttermyn BBd-Ad: Korttermynberoepsblootstellingsdrempel-aanbevole drempel (15 minute).

4.4 Bronnelys

- Abroyan, M.A., Kosogorov, S.L., Motovilov, S.A., Tumanov, I.A., Shvedyuk, V.Ia., *Plasma Devices and Operations*, 2004, **12** (2), 133 - 141.
- Akhmedzhanov, R.A., Vikharev, A.L., Gorbachev, A.M., Ivanov, O.A., Kolysko, A.L., *Tech. Phys.*, 1997, **42** (3) 260 - 268.
- Alonso, J.M., Valdés, M., Culleja, A.J., Ribas, J., Losada, J., *Ozone Sci. Eng.*, 2003, **25**: 363 - 376.
- ANON. 2005: 1-6. 3.9 Determination of ozone. [Web:] http://www.nilo.no/projects/ccc/manual/documents/03_9-Determination%20of%20ozone.htm [Datum van toegang: 22 November 2005].
- ANON. 2005:1-35. 2.3 Ozone generation and application. [Web:] <http://www.dsp.pub.ro/leonardo/itc-incsee/Chapter%202/> [Datum van toegang: 20 Julie 2005].
- ANON. 2005:1-4. Lenntech ozone generation. [Web:] <http://www.lenntech.com/ozone/ozone-generation.htm> [Datum van toegang: 13 Maart 2005].
- ANON. 2004: 1-5. Ozone solutions, Inc. [Web:] http://www.ozonesolutions.info/info/cd_vs_uv.htm [Datum van toegang: 30 Maart 2004].
- ANON. 2000:1-8. Praxair material safety data sheet. [Web:] [http://www.praxair.com/praxair.nsf/AllContent/3829B4DCC5CAB7585256A860081E82A/\\$File/p6219a.pdf](http://www.praxair.com/praxair.nsf/AllContent/3829B4DCC5CAB7585256A860081E82A/$File/p6219a.pdf) [Datum van toegang: 13 Maart 2005].
- ANON. 2005: 1. Sterizone. [Web:] <http://www.sterizone.co.za/products.php?cmactive=top7> [Datum van toegang: 13 November 2005].
- Bai, M., Bai, X., Shen, L., Zhang, Z., Zhou, X., In International ozone association, Proceedings of the 15th world congress London, U. K., 2001, **III**, 108 - 115.
- Balakrishnan, P.A., Arunagiri, A., Rao, P.G., *J. Electrostatics*, 2002, **56** (1), 77 - 86.
- Bogaerts, A., Neyts, E., Gijbels, R., van der Mullen, J., *Spectrochim. Acta, Part B*, 2002, **57**, 609 - 658.
- Braun, D., Küchler, U., Pietsch, G., *Ozone Sci. Eng.*, 1990, **12** (3), 255 - 268.

Castle, G.S.P., Inculet, I.I., Burgess, K.I., *IEEE Transactions on industry and general applications*, 1969, **5** (4), 489 - 496.

Choi, J.H., Baik, H.K., *In IEEE International Conference on Plasma Science, IEEE Conference record - abstracts: The 31st IEEE International Conference on Plasma Science, ICOPS2004*, 2004, p 199.

Damez, F., Vigouret, J., *Ozone Sci. Eng.*, 1981, **2**, 345 - 365.

Dennis, L.M., **Gas analysis**, The Macmillan Company, New York, 1920, p 181.

Dohan, J.M., Masschelein, W.J., *Ozone Sci. Eng.*, 1987, **9** (4), 315 - 334.

Dreisbach, R. H., **Handbook of poisoning**, Lange medical publications, Los Altos , California, 8th ed., 1974, p 181,182.

Eliasson, B., Kogelschatz, U., Baessler, P., *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1984, **17**, L797 - L801.

Fakhrzadeh, L., Laskin, J.D., Laskin, D. L., *Am J Physiol Lung Cell Mol Physiol*, 2004, **287**, L279 - L285.

Gaydon, A.G., **Dissociation energies and spectra of diatomic molecules**, Chapman and Hall Ltd, London, 1953, p 60- 65, 72, 152-175, 200-201.

Gibalov, V.I., Murata, T., Pietsch, G.J., *Ozone Sci. Eng.*, 2003, **25**, 431 - 443.

Gibalov, V.I., Pietsch, G.J., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2000, **33** (20, 21), 2618 - 2636.

Gordon, S.A., Chugtai, A.R., Smith, D.M., *Am. Lab.*, 2000, 12 - 13.

Grunwell, J., Benga, J., Cohen, H., Gordon, G., *Ozone Sci. Eng.*, 1983, **5**, 203 - 223.

Haacke, M., Humpert, C., Pietsch, G.J., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **24**, 193 - 201.

Hahn, J., Oksidasie prosesse van atmosferiese besoedelstowwe met osoon, PU vir CHO, (Verhandeling-M.Sc.), 1993, hoofstuk 3.

Haverkamp, R.G., Miller, B.B., Free, K.W., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **24**, 321 - 328.

Itoh, H., Rusinov, I., Suzuki, T., Suzuki, S., *In International ozone association, Proceedings of the 15th world congress London, U. K.*, 2001, I, 82 - 87.

Jodzis, S., *Ozone Sci. Eng.*, 2003, **25** (1), 63 - 72.

Kaneda, S., Hayashi, N., Ihara, S., Satoh, S., Yamabe, C., *Vacuum*, 2004, **73**, 567 - 571.

Klein, H-P., *ABB review*, 1990, (1), 11 - 18.

Kogelschatz, U., *Plasma Chem. Plasma Process.*, 2003, **23** (1), 1 - 46.

Kogelschatz, U., Baessler, P., *Ozone Sci. Eng.*, 1987, **9**, 195 - 206.

Kogelschatz, U., Eliasson, B., Egli, W., *J. Phys. IV*, 1997, **7** (C4), 47 - 66.

Laidler, K.J., Meiser, J.H., **Physical chemistry**, The Benjamin/Cummings Publishing Company, Inc., Menlo Park, California, 1982, 546, 553, 612, 613.

Llewellyn-Jones, F., **Ionization and breakdown in gases**, Methuen and company Ltd, London, John Wiley and sons Inc., New York, 1957, 128.

Loeb, B.L., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **24**, 399 - 412.

Ma, H., Qiu, Y., *Ozone Sci. Eng.*, 2003, **25**, 127 - 135.

Matejčík, S., Holubčík, C., Mikovíny, T., Fedor, J., Skalný, J.D., *In International ozone association, Proceedings of the 15th world congress London, U. K.*, 2001, III, 341 - 342.

McElroy, F., Determination of ozone by ultraviolet analysis. [Web:]
<http://epa.gov/ttn/amtic/files/ambient/qaqc/ozone4.pdf> [Datum van toegang: 13 Maart 2005].

Motret, O., Hibert, C., Pouvesle, J.M., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **24**, 203 - 213.

Murata, T., Okita, Y., Noguchi, M., Takase, I., *In International ozone association, Proceedings of the 15th world congress London, U. K.*, 2001, III, 39 - 54.

Okazaki, K., Nozaki, T., *Pure Appl. Chem.*, 2002, **74** (3), 447 - 452.

Pekárek, S., Rosenkranz, J., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **24**, 221 - 226.

Peyroux, R., *Ozone Sci. Eng.*, 2004, **26**, 11 - 19.

Pietsch, G.J., Humpert, C., Discharge mechanism and ozone generation by surface discharges depending on polarity.[Web:][http://www.ut.ee/hakone8/papers/T4/Pietsch\(TP\).pdf](http://www.ut.ee/hakone8/papers/T4/Pietsch(TP).pdf) [Datum van toegang:15 November 2005].

Pinart, J., Smirdec, M., Pinart, M.-E., Aaron, J.J., Benmansour, Z., Goldman, M., Goldman, A., *Atmospheric environment*, 1996, **30** (1), 129-132.

Piskarev, I.M., Ermakov, D.I., Selemir, V.D., Ivanovskii, A.V., Spirov, G.M., Shlepkin, S.I., *High energ. chem.*, 2004, **38** (2), 129-130.

Pontiga, F., Soria, C., Castellanos, A., Skalny, J.D., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **24**, 447 - 462.

Rorabacher, D.B., *Anal. Chem.*, 1991, **63** (2), 139-146.

Ruscic, B., Wagner, A.F., Harding, L.B., Asher, R.L., Feller, D., Dixon, D.A., Peterson, K.A., Song, Y., Qian, X., Ng, C-Y., Liu, J., Chen, W., Schwenke, D.W., *J. Phys. Chem. A*, 2002, **106** (11), 2727 - 2747.

Reed, R., Cole, S., *In International ozone association, Proceedings of the 15th world congress London, U. K.*, 2001, I, 379.

Skalny, J.D., Mikoviny, T., Mason, N.J., Sobek, V., *Ozone Sci. Eng.*, 2002, **23**, 29 - 37.

Suarasan, I., Ghizdavu, L., Ghizdavu, I., Budu, S., Dascalescu, L., *J. of Electrostatics*, 2002, **54**, 207 - 214.

Suid-Afrika: Wet op beroepsgesondheid en veiligheid, no. 85 van 1993. Regulasies vir gevaaarlike chemiese substansies, Pretoria: Staatsdrukker, p. 949,950.

Takeuchi, K., *In Encyclopedia of analytical science*, Eds. Worsfold, P., Townshend, A., Poole, C., Elsevier Ltd., 2005, 462 - 471. [Web] <http://www.sciencedirect.com> [Datum van toegang: 20 Junie 2005].

Viebahn-Haensler, R., *In International ozone association, Proceedings of the 15th world congress London, U. K.*, 2001, I, 20.

Visser, B., Method and apparatus for producing ozone, International application published under the patent cooperation treaty, Patent number: PCT/ZA00/00031, PCT issued on the 24th of February 2000.

Wette: **kyk** Suid-Afrika.

Williams, S., Campos, M.F., Midey, A.J., Arnold, S.T., Morris, R.A., Viggiano, A.A., *J. Phys. Chem. A*, 2002, **106**, 997-1003.

Wu, R., Chen, S., Lin, Y., Ozone generator with reduced NO_x and method thereof, United States Patent, 2003, US 6,517,787 B2.

Xu, X., *Thin solid films*, 2001, **390**, 237-242.

4.5 Dankbetuigings

Hiermee wil ek graag die volgende persone en instansies bedank.

Dr. Gerhard Lachmann en professor Okkie de Jager vir hul bekwame leiding tydens my studie.

Gerhard Moerdyk en Barend Visser vir hul waardevolle insette.

Johan Broodryk van die Glasblasery van die Noordwes-Universiteit (Potchefstroomkampus) vir die maak en hulp met die ontwerp van die vloeisel en ander doelgemaakte komponente van die apparaat.

Anriëtte Pretorius van die NWB vir haar hulp met die literatuursoektog.

Dr. Gerhard Lachmann en Petra Riedel van die IT Departement Potchefstroomkampus vir hul hulp met die formatering van die dokument.

Dr. Marietjie Nelson en prof. Niel Nelson vir die taalversorging van die dokument en die vertaling van die opsomming.

Die Noordwes-Universiteit (Potchefstroomkampus) en departement Fisika vir die finansiële ondersteuning.

My ma Charl Opperman en my gesin Arnold, Raadt, Melt en Charlé vir hul aanmoeding.