

# Trennung von Chlorwasserstoff und Wasser durch extraktive Destillation mit Schwefelsäure\*

Theodor Grewer\*\*

Zur Abtrennung von HCl aus azeotroper Salzsäure durch extraktive Destillation eignen sich wasserentziehende Mittel wie  $\text{CaCl}_2$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Durch Verwendung von Graphit als Kolonnenwerkstoff wird die extraktive Destillation mit  $\text{H}_2\text{SO}_4$  zu einem technisch interessanten Verfahren. Als Grundlage für die Auslegung der Destillation wurde das Siedediagramm  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  isobar bei 750 Torr untersucht. Dabei ergab sich u. a., daß die pseudoazeotrope Linie (d. h. die Kurve im Dreiecksdiagramm, auf der das Verhältnis der Konzentration von HCl und  $\text{H}_2\text{O}$  in der Flüssigkeit und im Dampf gleich ist) einen wesentlich günstigeren Verlauf hat, als aus einer früheren Arbeit von Lutschinskij hervorgeht. Versuche zur kontinuierlichen Destillation mit einer Laborkolonne haben gezeigt, daß bei geeigneter Arbeitsweise im Sumpf der Kolonne eine hinreichend HCl-freie Schwefelsäure entnommen werden kann, so daß bei deren Aufkonzentrierung keine nennenswerten Verluste an HCl entstehen.

Bei einigen Prozessen der chemischen Industrie fällt verdünnte Salzsäure an, aus der die Gewinnung von konzentrierter Salzsäure oder Chlorwasserstoff wegen des Azeotrops bei etwa 20 Gew.-% Chlorwasserstoff durch einfache Rektifikation nicht möglich ist. Es liegt daher nahe, die Trennung mit Hilfe eines Zusatzstoffes, d. h. durch extraktive Destillation auszuführen. Als Zusatzstoffe eignen sich Substanzen, die wasserentziehend wirken und dadurch die relative Flüchtigkeit des Chlorwasserstoffs erhöhen. Die Verwendung von Calciumchlorid als Zusatzstoff ist bereits beschrieben worden [1]. Im folgenden soll über die extraktive Destillation mit Schwefelsäure berichtet werden.

Als Werkstoff eignet sich hierfür Apparatebaugraphit, ein mit Kunstharz imprägnierter Elektrographit, der gegen wäßrige Schwefelsäure und Salzsäure absolut beständig ist. Kolonnen aus diesem Werkstoff sind z. B. bei der adiabatischen Chlorwasserstoff-Absorption mit Erfolg verwendet worden [2]. Aus Apparatebaugraphit können nicht nur die Trennkolonnen einschließlich der Einbauten (Böden oder Füllkörper) angefertigt werden, sondern auch die Rücklaufkondensatoren, die Sumpfheizung (mit Graphit-Rohrbündel-Umlaufverdampfer), die Schwefelsäure-Eindampfanlage sowie alle verbindenden Rohrleitungen, Armaturen und Pumpen. Daher ist die Errichtung einer Großanlage für die Trennung von HCl und  $\text{H}_2\text{O}$  mit  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ohne weiteres möglich.

Abb. 1 zeigt das Schema einer kontinuierlich arbeitenden Trennanlage. Die verdünnte (z. B. azeotrope) Salzsäure wird am Kopf der Kolonne I aufgegeben. In einem seitlichen Zulauf etwas unterhalb des Kopfes strömt relativ konzentrierte Schwefelsäure zu. Aus dem über Kopf abgehenden Dampf, der aus HCl und  $\text{H}_2\text{O}$  besteht, wird konzentrierte Salzsäure auskondensiert und als Rücklauf auf die Kolonne gegeben. Abgenommen wird gasförmiger

Chlorwasserstoff oder konzentrierte Salzsäure. Im Sumpf fließt verdünnte Schwefelsäure ab, die im Verdampfer II aufkonzentriert wird und wieder zur Kolonne I zurückfließt.

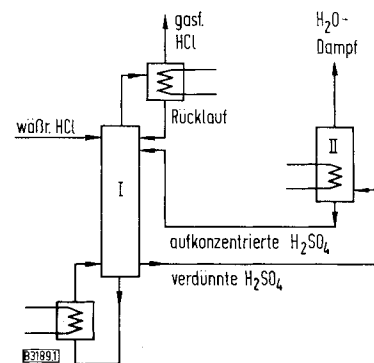


Abb. 1. Schema der Trennanlage für  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$  mit  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

Sehr wesentlich für die Trennung ist, daß die Abtrennung des Chlorwasserstoffs von der wäßrigen Schwefelsäure in Kolonne I möglichst vollständig ist, d. h. die aus dem Sumpf von I ablaufende verdünnte Schwefelsäure soll praktisch keinen Chlorwasserstoff enthalten, denn dieser würde mit dem Wasserdampf des Verdampfers II abgehen und damit ein unerwünschtes Abwasserproblem verursachen.

## Siedegleichgewicht $\text{HCl}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$

Über das Dampf/Flüssigkeits-Gleichgewicht des ternären Systems  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  sind Meßergebnisse von Lutschinskij [3] sowie von Moriyama und Sakayori [4] veröffentlicht worden. Während Lutschinskij für seine Messungen eine Strömungsmethode benutzte, haben Moriyama und Sakayori durch einfache Destillation Destillationslinien gemessen und daraus indirekt das Siedegleichgewicht ermittelt.

Im folgendem werden Gleichgewichtsdaten mitgeteilt, die mit einer Umlaufapparatur nach Röck und Sieg [5] isobar bei 750 Torr gemessen worden sind. Die Proben der

\* Vortrag auf der AICHEM 1970, am 21. 6. 1970 in Frankfurt/M.

\*\* Dr. Th. Grewer, Farbwerke Hoechst AG, vormals Meister Lucius & Brüning, Frankfurt/M.-Höchst.

koexistenten Phasen wurden durch Titration analysiert. Der Gesamt-Säuregehalt wurde acidimetrisch titriert, der Gehalt an Chlor-Ionen argentometrisch nach *Mohr*. Zunächst wurden einige Messungen an den binären Systemen  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  ausgeführt. Abb. 2 zeigt die für das System  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$  erhaltenen Ergebnisse in Form von Siede- und Taukurve. Sie weichen etwas ab von früher von *Othmer* publizierten Daten [6]. Die Lage des Azeotrops stimmt aber gut überein mit den sehr sorgfältig gemessenen azeotropen Daten von *Bonner* und *Wallace* [7]. Die im System  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  gemessenen Daten stimmen befriedigend überein mit Messungen von *Lutschinskij* [8].

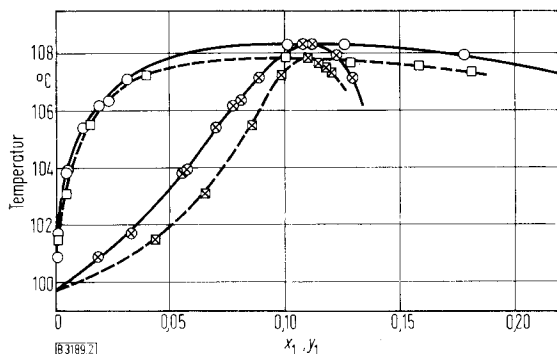


Abb. 2. Isobares Siedegleichgewicht  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$ :  $x_1$  Molenbruch von  $\text{HCl}$  in der flüssigen Phase,  $y_1$  Molenbruch von  $\text{HCl}$  im Dampf. — nach *Othmer* [6] (751,3 Torr), — eigene Messungen (750 Torr).

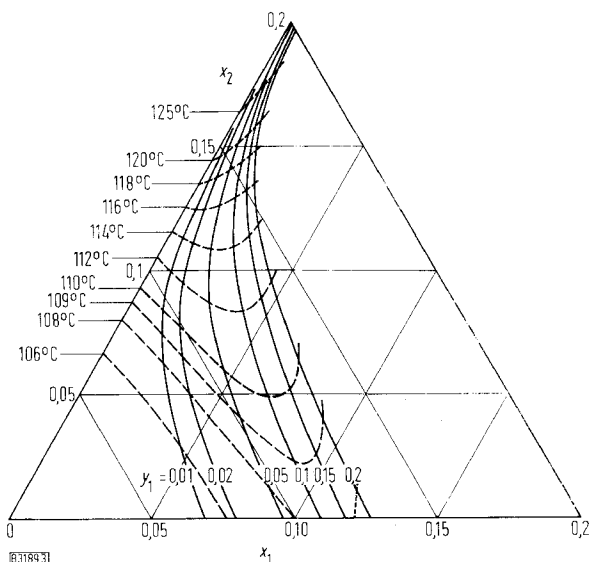


Abb. 3. Isobares Siedegleichgewicht  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  bei 750 Torr:  $x_2$  Molenbruch von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in der flüssigen Phase. — Linien konstanter Dampfzusammensetzung, — Isothermen.

Das ternäre System  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  wurde in einem Konzentrationsbereich bis etwa 20 Mol-% Schwefelsäure in der flüssigen Phase und bis etwa 20 Mol-% Chlorwasserstoff im Dampf untersucht. Messungen bei höheren  $\text{HCl}$ -Konzentrationen sind mit der verwendeten Apparatur nicht möglich, da sich das Kondensat entmischt. Aus den Meßwerten wurden die Kurven gleicher Dampfzusammensetzung und die Isothermen ermittelt, die in Abb. 3 in einem Dreiecksdiagramm dargestellt sind. Analysen des Kondensats ergaben, daß der Schwefelsäure-Gehalt im

Dampf unter der Nachweisgrenze von 0,002 Mol-% lag<sup>1)</sup>, und daher völlig vernachlässigt werden kann. Eine Prüfung auf thermodynamische Konsistenz, z. B. mit der Duhem-Margules-Gleichung, ist nicht möglich, da der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Partialdruck nicht gemessen worden ist. Umgekehrt kann durch Integration der Duhem-Margules-Gleichung aus den Literaturdaten des Systems  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  [8] und den Meßergebnissen der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Partialdruck berechnet werden. Man findet so im gesamten untersuchten Konzentrationsbereich für den  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Molenbruch im Dampf  $y_2 < 10^{-6}$ .

Abb. 4 zeigt den Molenbruch  $y_1$  von Chlorwasserstoff im Dampf in Abhängigkeit vom Molenbruch  $x_1$  in der flüssigen Phase für verschiedene Schwefelsäure-Konzentrationen  $x_2$  in der Flüssigkeit. Für das System  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$  gilt bekanntlich das Henrysche Gesetz nicht, d. h. die Gleichgewichtskurve hat im Koordinatenursprung die Steigung Null (vgl. z. B. [9]). Bei Anwesenheit von Schwefelsäure dagegen verlassen die Kurven den Ursprung mit endlicher Steigung. Der Punkt, bei dem sie die Gerade  $x_1 = y_1$  schneiden, wandert mit zunehmendem  $x_2$  zu kleineren  $x_1$ -Werten und verschwindet von  $x_2 \approx 0,10$  ab ganz. Die von uns gemessenen Gleichgewichtskurven stimmen mit den Ergebnissen von *Moriyama* und *Sakayori* [4] annähernd überein. Diese Autoren haben in einem etwas kleineren Konzentrationsbereich gemessen. Sie haben keine Siedetemperaturen bestimmt und machen daher keine Angaben über den Verlauf der Isothermen.

Dagegen bestehen große Unterschiede zwischen den Angaben von *Lutschinskij* [3] und unseren Ergebnissen. Die sog. „pseudoazeotrope Linie“, auf der das Konzentrationsverhältnis  $\text{HCl}:\text{H}_2\text{O}$  im Dampf und in der Flüssigkeit übereinstimmt, soll nach *Lutschinskij* vom binären  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$ -Azeotrop aus bis zu einem Punkt bei 0,6 Mol-%  $\text{HCl}$  und 23,4 Mol-%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  laufen und von da aus wieder zurück in die Ecke des reinen  $\text{H}_2\text{O}$ . Nach unseren Messungen dagegen endet die pseudoazeotrope Kurve bei 10 Mol-%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  auf der  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Seite des Konzentrationsdreiecks. Mehrere Meßpunkte, bei denen der  $\text{HCl}$ -Gehalt im Dampf erheblich höher war als in der Flüssigkeit, müßten nach *Lutschinskij* innerhalb der pseudoazeotropen Kurve

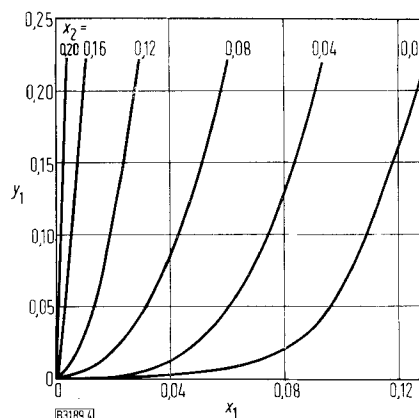


Abb. 4. Gleichgewichtskurven für konstanten Molenbruch von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in der Flüssigkeit (750 Torr) für das System  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ .

1) Für diese Analysen ist der Verfasser Herrn Dr. S. Gorbach zu Dank verpflichtet.

liegen. Auch der von *Lutschinskij* angegebene Verlauf der Isothermen konnte nicht bestätigt werden. Er ist auch thermodynamisch nicht möglich, da nach *Lutschinskij* eine Isotherme (109°C) vom HCl/H<sub>2</sub>O-Azeotrop aus zur H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O-Seite des Konzentrationsdreiecks laufen und während dieses ganzen Verlaufs ein Temperaturmaximum darstellen soll. Das würde dem 1. Satz von *Konowalow* widersprechen, der auch für ternäre Systeme gilt und aussagt: wenn bei konstantem Druck die Temperatur einen Extremwert hat, müssen Dampf und Flüssigkeit die gleiche Zusammensetzung haben. Gegen die Untersuchungsmethode von *Lutschinskij* ist einzuwenden, daß infolge der durchströmenden Luft keine exakt isobaren Daten gemessen werden.

## Extraktive Destillation

Mit den gemessenen Daten ist nun die Auslegung einer Destillationskolonne möglich, wobei man am besten das Diagramm der Abb. 4 zugrundelegt. Wenn man in erster Näherung die Enthalpieeffekte vernachlässigt, kann man mit einer konstanten H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration im Abtriebs- teil der Kolonne I (vgl. Abb. 1) rechnen. Dann kann für eine gegebene H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration in der Abtriebs säule mit Hilfe der zugehörigen Gleichgewichtskurve aus Abb. 4 (oder einer entsprechenden, mit Hilfe von Abb. 3 konstruierten Kurve) das McCabe-Thiele-Diagramm gezeichnet werden. Dieses Vorgehen ist an sich trivial und braucht nicht weiter diskutiert zu werden. Von Interesse ist aber, inwieweit die oben erwähnte Forderung nach einem möglichst geringen HCl-Gehalt im Sumpf der Kolonne verwirklicht werden kann.

Man könnte annehmen, daß hierfür die pseudoazeotrope Kurve maßgebend sei, d. h. daß man zu verschwindendem HCl-Gehalt im Sumpf käme, wenn die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration im Sumpf > 10 Mol.-% wäre. Das ist aber nicht der Fall. Eine Grenzkurve für die im Sumpf erreichbare minimale HCl-Konzentration in Abhängigkeit von der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Sumpfkonzentration erhält man wie folgt: Zu vorgegebener HCl-Sumpfkonzentration  $x_{1s}$  hat die Abtriebsgerade die Gleichung

$$y_1 = \frac{F}{D} x_1 - \frac{F-D}{D} x_{1s} \quad (1)$$

( $F, D$  = Flüssigkeits- bzw. Dampfstrom in der Kolonne, molar). Zwischen der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration in der Kolonne  $x_{20}$  und im Sumpf  $x_{2s}$  besteht der Zusammenhang

$$x_{20} = \frac{F-D}{F} x_{2s} \quad (2)$$

Zu gegebenem  $x_{20}$  erhält man den niedrigsten Wert für  $x_{2s}$ , wenn die Steigung der Abtriebsgeraden  $F/D$  ihren höchsten Wert hat, d. h. wenn die Abtriebsgerade Tangente an die Gleichgewichtskurve (Abb. 4) für  $x_{20}$  ist. Indem man diese Prozedur für mehrere Werte von  $x_{20}$  ausführt, erhält man den niedrigstmöglichen Wert für  $x_{2s}$  zu vorgegebenem  $x_{1s}$ . Die so ermittelten minimalen  $x_{2s}$ -Werte in Abhängigkeit von  $x_{1s}$  sind in Abb. 5 als Kurve im Konzentrationsdreieck dargestellt. Man muß somit mit einer H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration im Sumpf von mindestens 17,5 Mol.-% (54 Gew.-%) arbeiten, wenn der Sumpf möglichst

HCl-frei sein soll. Wenn man einen gewissen HCl-Gehalt im Sumpf zuläßt, kann die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration niedriger sein.

Die in Abb. 5 dargestellte Kurve gibt nur die Grenze für die erreichbaren Sumpfkonzentrationen an; sie entspricht natürlich nicht der optimalen Arbeitsweise der Kolonne, da die zugehörige Bodenzahl  $\infty$  und das  $F/D$ -Verhältnis groß ist. Bei wirtschaftlichem Betrieb der Kolonne wird man etwas über der Grenzkurve liegen.

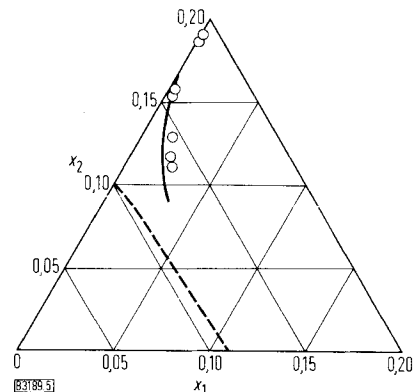


Abb. 5. System HCl/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O; --- pseudoazeotrope Kurve, — Kurve minimaler HCl-Konzentration im Sumpf, ○ gemessene Sumpfkonzentrationen.

Zur Frage der Anwendbarkeit der Methode von *McCabe* und *Thiele* soll noch folgendes vermerkt werden: Die Abhängigkeit der Enthalpie von der Konzentration ist zwar beträchtlich, aber der für das Gelingen der Destillation entscheidende Konzentrationsbereich ist relativ eng. Daher kann bei der vorstehenden Überlegung durch die Vernachlässigung der Enthalpieeffekte kein großer Fehler entstanden sein.

## Destillationsversuche mit einer Laborkolonne

Es wurden einige Versuche mit einer kontinuierlich arbeitenden Laborkolonne ausgeführt, mit denen die Richtigkeit der aus den gemessenen Gleichgewichtsdaten ermittelten Grenzkurve überprüft werden sollte. Diese Versuche liefern gleichzeitig eine gewisse Kontrolle für die Gleichgewichtsmessungen. Es wurde eine Füllkörperkolonne von 30 mm Dmr. und 1 m Länge benutzt. Die Füllkörper waren 4-mm-Glaswendeln. Am Kopf der Kolonne wurde ein vorgeheiztes Gemisch aus Schwefelsäure, Chlorwasserstoff und Wasser eingespeist. Der Kopfdampf wurde durch Wasserkühlung kondensiert, das Kondensat wurde als Rücklauf auf die Kolonne gegeben, während Chlorwasserstoff gasförmig entwich. Die im Sumpf abfließende Schwefelsäure wurde analysiert. Die bei verschiedenen Versuchen ermittelten Sumpfkonzentrationen sind in Abb. 5 eingetragen. Die Meßpunkte kommen ziemlich nahe an die aus den Gleichgewichtsdaten ermittelte Grenzkurve heran. Somit bestätigen die Destillationsversuche die oben angestellten Überlegungen über die Sumpfkonzentration und stimmen mit den Ergebnissen der Siedegleichgewichtsmessungen überein. Die pseudoazeotrope Kurve, die ebenfalls in Abb. 5 einge-

zeichnet ist, hat für das Destillationsproblem keine direkte praktische Bedeutung.

Abschließend soll ein Beispiel für eine mögliche Arbeitsweise der Kolonne für die extraktive Destillation gegeben werden: Azeotrope Salzsäure (20 Gew.-% HCl), aus der Chlorwasserstoff abgetrennt werden soll, wird am Kopf der Kolonne aufgegeben. Unter dem obersten Boden wird Schwefelsäure von 75 Gew.-% zugespeist. Chlorwasserstoff wird gasförmig abgenommen und das Kondensat des Rücklaufkühlers vollständig auf den Kopf der Kolonne gegeben. Das Verhältnis von Flüssigkeits- und Dampfstrom in der Abtriebssäule soll  $F/D = 10$  sein. Das Sumpfprodukt enthält 55 Gew.-%  $H_2SO_4$  und, wenn die Abtriebssäule sieben theoretische Böden hat, 0,1 Gew.-% HCl. Mit zunehmender Bodenzahl kann diese HCl-Konzentration beliebig erniedrigt werden.

Herrn Dr. H. Würmseher, Meitingen, sei für wertvolle Diskussionen gedankt.

Eingegangen am 15. Oktober 1970 [B 3189]

## Literatur

- [1] J. Synowiec, Ind. chim. belge, 33, 351 [1968].
- [2] E. Kolbe, F. Brandmair, diese Ztschr. 35, 262 [1963].
- [3] G. P. Lutschinskij, J. physik. Chem. (UdSSR) [Ž. Fiz. Chim.] 13, 1340 [1939].
- [4] T. Moriyama, T. Sakayori, J. chem. Soc. Japan [Kogyo Kagaku Zasshi] 64, 1877 [1961].
- [5] H. Röck, L. Sieg, Z. physik. Chem. N. F. 3, 355 [1955].
- [6] D. F. Othmer, Ind. Engng. Chem. 20, 743 [1928].
- [7] W. D. Bonner, R. E. Wallace, J. Amer. chem. Soc. 52, 1747 [1930].
- [8] G. P. Lutschinskij, J. physik. Chem. (UdSSR) [Ž. Fiz. Chim.] 30, 1207 [1956].
- [9] K. Denbigh, The Principles of Chemical Equilibrium, 2. Aufl., University Press, Cambridge 1966.

# Über den Einfluß von Formkörpern unterschiedlicher Stückgröße und Gestalt auf den Strömungswiderstand von Schüttungen

Horst Luther †, Otto Abel, Karl Rittner, Manfred Gieseler und Hans-Joachim Schultz \*

An Schüttungen von Festkörpern (Koks und Erz) verschiedener Form und Stückgröße sowie an Mischungen aus den Komponenten wurden bei Durchströmungsversuchen Druckverlustkurven aufgenommen und die Widerstandsbeiwerte der Schüttungen nach bekannten Beziehungen berechnet. Aus den Ergebnissen wurden unter Berücksichtigung der verschiedenen Rohdichten der Einsatzstoffe Folgerungen für den praktischen Betrieb von Festbett-Reaktoren, hier speziell dem Hochofen, gezogen.

Man ist neuerdings intensiv darum bemüht, kontinuierliche Verfahren zur Verkokung von Steinkohlen zu entwickeln. Aussicht auf Erfolg scheinen dabei die sog. Formkoksverfahren zu haben, bei denen Briketts einheitlicher Form verkocht werden [1–3]. Für einen derartigen Formkok stellt sich die Frage, welche Form er bei vorgegebenem Erz haben sollte, um ohne Verminderung des Schüttgewichtes die günstigste Durchströmung eines Hochofenschachtes zu ermöglichen. Welcher Druckverlust sich im Einzelfall ergibt, kann nur aus Messungen an Schüttungen mit Koksen unterschiedlicher Formate ermittelt werden. Der Strömungswiderstand von Hochofeneinsatzstoffen unregelmäßiger Form und Stückgröße wurde bereits mehrfach vermessen. Diese Arbeit soll einen Beitrag zur Lösung der Frage bringen [4–10], welche Strömungswiderstände in Schüttungen von Formkokks sowie von Formkokks-Mischungen mit Pellets, Sinter oder unregelmäßig geformten Stücken von Erzen im Vergleich zu Brechkoks- bzw. Brechkoks/Erz-Schüttungen auftreten.

Theoretische Ansätze zur Erfassung des Strömungswiderstandes sind verschiedentlich in Monographien [11–14] und Übersichtsartikeln [15, 16], behandelt worden. Zur Erfassung des Zusammenhanges zwischen dem Strömungswiderstand und den Eigenschaften einer durchströmten Schüttung sowie eines strömenden Mediums im laminaren und turbulenten Bereich wird meist von der Carman-Kozeny-Gleichung [11] ausgegangen<sup>1</sup>:

$$\psi = \frac{\Delta P d_a \varepsilon^3}{H \rho w_0^2 (1 - \varepsilon)} = f(\text{Re}') = f\left(\frac{w_0 d_a}{\nu} \cdot \frac{1}{1 - \varepsilon}\right) \quad (1)$$

Nach Ergun [17] gilt für kugelähnliche Granulate im Bereich  $1 < \text{Re}' < 2500$ :

$$\psi = 150/\text{Re}' + 1,75 \quad (2a)$$

Brauer [18] fand für Gleichkornschüttungen aus Kugeln die Beziehung:

$$\psi = 160/\text{Re}' + 3,1/\text{Re}'^{0,1} \quad (2b)$$

Jeschar [19] erweiterte die Gültigkeit von Gl. (2b) auf Zweikomponentenschüttungen:

$$\psi_m = [160/\text{Re}'_m + 3,1/\text{Re}'_m^{0,1}] \cdot \left[\frac{\varepsilon_k}{\varepsilon_m}\right]^{0,75} \quad (2c)$$

In die Kenngröße  $\text{Re}'_m$  ist der äquivalente Stückdurchmesser der Mischung  $d_{am}$  einzusetzen:

\* Prof. Dr.-Ing. H. Luther †, Prof. Dr.-Ing. O. Abel, Dr.-Ing. K. Rittner, Dipl.-Ing. M. Gieseler, Dipl.-Ing. H. J. Schultz, Institut für Chemische Technologie und Brennstofftechnik der Techn. Universität Clausthal.

1) Erläuterung der Formelzeichen am Schluß der Arbeit.