



Lehrstuhl für Verfahrenstechnik des industriellen Umweltschutzes

Masterarbeit

The background features a large, faint watermark of the University of Leoben seal. The seal is circular and contains a shield with four quadrants: top-left shows crossed hammers, top-right shows a stork, bottom-left shows a rampant lion, and bottom-right shows a staircase. The text 'UNIVERSITAS LEOBENSIS' is written around the perimeter of the seal.

Aufschmelzexperimente mineralischer
Materialien im Mikrowellenplasma

Dominik Trupina, BSc

Mai 2024



EIDESSTÄTTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel nicht benutzt, den Einsatz von generativen Methoden und Modellen der künstlichen Intelligenz vollständig und wahrheitsgetreu ausgewiesen habe, und mich auch sonst keiner unerlaubten Hilfsmittel bedient habe.

Ich erkläre, dass ich den Satzungsteil „Gute wissenschaftliche Praxis“ der Montanuniversität Leoben gelesen, verstanden und befolgt habe.

Weiters erkläre ich, dass die elektronische und gedruckte Version der eingereichten wissenschaftlichen Abschlussarbeit formal und inhaltlich identisch sind.

Datum 14.05.2024

Unterschrift Verfasser/in
Dominik Trupina

DANKSAGUNG

Ein großer Dank geht an Dr. Christian Weiß, den Betreuer dieser Arbeit, für gute Ratschläge, Ideen, Anregungen und die Betreuung der Versuche am Mikrowellen-Setup.

Besonderer Dank gilt auch Dario Antunovic, welcher die verwendete APS-Brennkammer gebaut hat.

Ebenfalls ist der Metapline (insbesondere Dr. Martin Dopler) zu danken, welche die Räumlichkeiten für die Versuche zur Verfügung gestellt und immer mitgeholfen hat, wenn dies notwendig war.

Zum Schluss danke ich auch meinen Eltern, meinen Freunden und meiner Familie, welche durch die gesamte Studienzeit hinweg eine konstante, große Unterstützung waren.

Kurzfassung

Aufschmelzexperimente mineralischer Materialien im Mikrowellenplasma

Beim Mikrowellenplasma dient Mikrowellenstrahlung als Energiequelle für die Zündung eines Plasmagases. Dies erzeugt eine Plasmaflamme, welche eine Temperatur von mehreren hundert bis mehreren tausend Grad Celsius aufweist. Da das Mikrowellenplasma keine exotherme chemische Reaktion benötigt und sich die geometrische Form des Plasmas beeinflussen lässt, kommt diese Art von Plasmabrennern für diverse Hochtemperaturanwendungen in der Metallurgie und der Hochtemperaturverfahrenstechnik in Betracht. Das Ziel der Arbeit ist die Implementierung einer Mikrowellenplasmabrennkammer am Lehrstuhl für Verfahrenstechnik des industriellen Umweltschutzes an der Montanuniversität Leoben (MUL-VTIU) für die partielle Aufschmelzung bzw. Sphäroidisierung von mineralischen Pulvern. Die Grundüberlegung dahinter ist das Energiesparpotential und eine mögliche Homogenisierung des Energieeintrages im Mikrowellenplasma gegenüber anderer Hochtemperaturbrenner. Es soll untersucht werden, mit welchen Anordnungen ein atmosphärisches Mikrowellenplasma mit Argon als Plasmagas realisiert werden kann. Dies wird in drei Teilschritten realisiert. Dazu wurden zuerst zwei unterschiedliche Mikrowellenplasma-Brennkammern gebaut. Die Zündfähigkeit dieser mit Mikrowellenkomponenten in 2,45 GHz-Technik wurde bewiesen. Als Anwendungstest wurde eine Korund-Pulverprobe sphäroidisiert. Basierend auf den Sphäroidisierungsversuch wurde die benötigte Energiemenge zum Schmelzen berechnet und ein grober, benötigter Leistungsfaktor der Brennkammer abgeschätzt.

Schlagworte: Mikrowellenplasma, Mikrowellenplasmafackel, resonatorbasierte Plasmabrenner

Abstract

Melting experiments of mineral materials in a microwave plasma

In a microwave plasma, plasma gas is ignited and maintained by using microwave radiation, which can lead to temperatures in the range of up to several thousand degree Celsius. The microwave plasma can burn without the need for an exothermic fuel oxidation reaction and it is possible to influence its geometric shape. These are ideal conditions for high-temperature application in metallurgy and high-temperature process engineering. The goal is the implementation of a microwave plasma burner at the Chair of Process Engineering and Industrial Environmental Protection at the Montanuniversität Leoben (MUL-VTIU) for partial melting/spheroidization of mineral powders. The plasma state may provide efficient energy input and homogenous energy distribution in the sample compared to other burner designs. It was further investigated which arrangements allow for maintenance of an atmospheric microwave plasma with argon as the plasma gas. Realization of the project was in three steps. Two different plasma-burners were constructed, following ignition tests using microwave generators operating at 2,45 GHz. As a final application test a sample of corundum powder was spheroidized and the energy demand required for melting the sample as well as a performance factor of the burner were calculated.

Keywords: microwave plasma, microwave plasma torch, resonator based plasma

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1 EINLEITUNG UND PROBLEMSTELLUNG.....	2
2 GRUNDLAGENTEIL.....	3
2.1 Grobe Einteilung bekannter Plasmazustände	3
2.2 Stand der Technik.....	6
3 VERSUCHSDURCHFÜHRUNG	14
3.1 Vorversuche.....	16
3.1.1 TIA.....	17
3.1.2 APS	20
3.1.3 Probenwahl.....	23
3.2 Schmelzversuche.....	23
4 ERGEBNISSE UND DISKUSSION.....	27
4.1 Arbeitssicherheit	27
4.2 TIA-Plasma	29
4.3 APS-Plasma	31
4.4 Charakterisierung des Pulverfeedstroms	31
4.4.1 Massenstrom	31
4.4.2 Wiederfindungsrate.....	33
4.4.3 Korngrößenverteilung	35
4.5 Schmelzversuche.....	39
4.5.1 Plasmaflamme	40
4.5.2 Aluminiumoxid	45
4.5.3 Zirkonoxid	51
5 ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK.....	55
6 VERZEICHNISSE	57
6.1 Literatur.....	57
6.2 Formelzeichen	60
ANHANG.....	I

1 Einleitung und Problemstellung

Die Plasmachemie bietet eine Vielfalt an Applikationsmöglichkeiten. Nach heutigem Stand wird aber nur ein Bruchteil dieser weitläufig eingesetzt (ICP für Analysezwecke, Lichtbögen zur Erzeugung von Schmelzen (Olesik 1991; Alexander-Katz 1919)). Ein Plasma kann auf mehrere, unterschiedliche Arten erzeugt werden. In industriellem Maßstab wird ein Plasma konventioneller Weise durch ein brennbares Gas oder einen Lichtbogen erzeugt. Die Prozesse der Zündung brennbarer Gase sind komplex, schwer handzuhaben und besitzen lange Anfahrzeiten, wohingegen Lichtbögen Elektroden besitzen, welche beim Einsatz verschleifen (Leins 2010).

Ein Mikrowellenplasma arbeitet ohne diese Nachteile. Ein wesentlicher Vorteil ist, dass die Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung und nicht durch exotherme chemische Reaktionen eingebracht wird. Dies ermöglicht ein Plasma in Schutzgasatmosphäre. Durch Injektion einer Feststoffprobe in das Plasma entfällt der Energieaufwand für das Erhitzen eines Behälters. Durch Eingriff in das Strömungsverhalten des Plasmagases lässt sich das Plasma in Form und Ausprägung beeinflussen (Leins 2010; Kopecki 2012).

In dieser Arbeit wird der Prozess der Realisierung einer Mikrowellenplasmabrennkammer (eines Mikrowellenplasmasystems) am Lehrstuhl für Verfahrenstechnik des industriellen Umweltschutzes an der Montanuniversität Leoben (MUL-VTIU) beschrieben. Ziel der Arbeit ist ein funktionierendes Mikrowellenplasmasystem, welches zum Schmelzen bzw. Sphäroidisieren von Keramikpulvern ausreicht. Zum Schluss wird ein grober, erforderlicher Leistungsfaktor der Brennkammer berechnet.

Die folgenden Kapitel beginnen mit einer Definition der Plasmachemie (inklusive Begriffsdefinition thermisches und nichtthermisches Plasma), dem Stand der Technik und der industriellen Anwendung von Plasmaquellen. Basierend darauf werden Brennkammertypen der Mikrowellenplasmafackel mit Vor- und Nachteilen präsentiert und davon zwei für die Konstruktion und weiteren Versuche ausgewählt. Nach der Versuchsdurchführung folgen die Ergebnisse inklusive der Diskussion. Abschließend werden die Erkenntnisse zusammengefasst und mögliche weitere Schritte werden besprochen.

2 Grundlagenteil

In diesem Kapitel wird die Theorie hinter der Plasmachemie bzw. des Mikrowellenplasmas genauer erläutert und der Stand der Technik der Mikrowellenplasmafackel präsentiert.

2.1 Grobe Einteilung bekannter Plasmazustände

Die Plasmatechnologie findet Anwendung in neuen Prozessen der chemischen Synthese, der Oberflächenbehandlung sowie im biomedizinischen Bereich, wie beispielsweise zur Dekontamination von Oberflächen, Gasen und Flüssigkeiten (Ehlbeck et al. 2011; Laroussi 2012; Weltmann et al. 2012).

Ein physikalisches Plasma ist, definitionsgemäß, eine fluide Mischung von Photonen, Elektronen, Ionen, Neutralteilchen, und Radikalen. Atome und Moleküle kommen im Grundzustand und angeregt vor. Erzeugt wird ein Plasma durch Ionisation (von meistens Gasen). Dies geschieht durch Wärmezufuhr oder Energieeinkopplung mittels Wellen- oder Teilchenstrahlung bzw. durch ein elektrisches Feld (Rutscher und Deutsch 1983).

In der Plasmachemie existieren zwei Definitionen eines physikalischen Plasmas:

- Das thermische Plasma
- Das nichtthermische Plasma

Ein reales Plasma (thermisch und nichtthermisch) befindet sich nie im vollständigen thermodynamischen Gleichgewicht. Eine Grenze zwischen dem thermischen und dem nichtthermischen Plasma bildet das Ausmaß des thermodynamischen Ungleichgewichtes (des Temperaturunterschieds) zwischen Elektronen, Ionen und Neutralteilchen.

Das thermische Plasma befindet sich in einem annähernd vollständigen thermodynamischen Gleichgewicht (die beteiligten Elektronen, Ionen und Neutralteilchen weisen die gleiche Temperatur auf). Dieses wird durch beispielsweise Gleichstrom- und Wechselstrom-Lichtbogenentladungen, Plasmafackeln, Funkenentladungen oder Radiofrequenz- und Mikrowellenfeldentladungen bei Atmosphärendruck erzeugt. Für die Zündung eines Plasmas im Atmosphärendruck auf Basis von statischer Entladung muss die Durchbruchspannung der Luft überwunden werden. Diese ist von der Funkenstrecke und der Gaszusammensetzung (beispielsweise dem Partialdruck des Wasserdampfes in der Atmosphäre wie in Abbildung 1) abhängig (Köhrmann 1956). Das Plasma wird in einem neutralen Arbeitsgas (Plasmagas) erzeugt und weitere Komponenten werden so eingespeist, dass die Stabilität des Plasmas nicht gefährdet wird. Temperaturen ab 10^3 ... 10^4 K sind charakteristisch für thermische Plasmen (Boulos 1994; Hammer 1999).

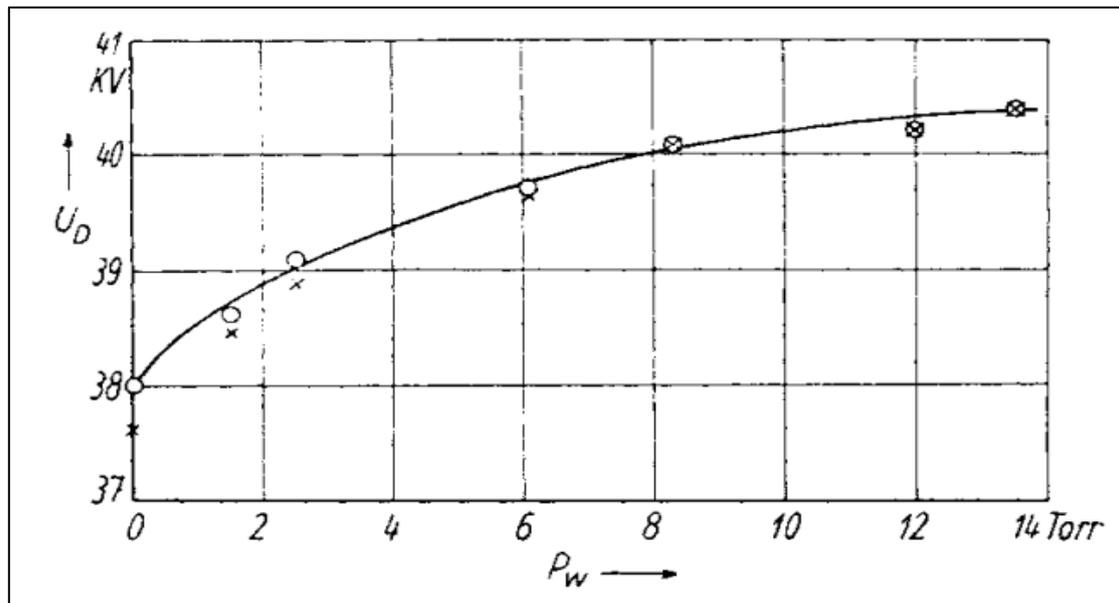


Abbildung 1: Durchbruchspannung in Abhängigkeit von Wasserdampf-Partialdruck p_w . Gesamtdruck $p_w + p_L = 500$ Torr (20°C), Abstand der Funkenstrecke $d = 2$ cm; X Anfangswert; o nach 100 Durchschlägen (Köhrmann 1956)

Das typische nichtthermische Plasma entsteht bei niedrigerem Druck als dem Atmosphärendruck, da in diesem Fall die Durchbruchspannung geringer ist. Dies wird mittels kapazitiver Radiofrequenzentladung (13,65 MHz oder 27,30 MHz), *MIKROWELLENPLASMA* (915 MHz oder 2,45 GHz), Magnetronentladung, induktiv gekoppelt oder mittels Hohlkathodenentladungen erzeugt. Nichtthermische Plasmen bei Atmosphärendruck können realisiert werden, jedoch wird grundsätzlich ein Plasma mit steigendem Druck und der daraus folgenden steigenden Elektronendichte immer thermischer. Der Zusammenhang zwischen Druck und Temperatur der beteiligten Elektronen, Ionen und Neutralteilchen wird in Abbildung 2 schematisch dargestellt. Bei atmosphärischem und höherem Druck lassen sich nichtthermische Plasmen mittels Barrierentladung, Koronaentladung, Schüttgutreaktor mit di-/ferroelektrischer Füllung, Gleitlichtbogen, Plasmajet oder *PLASMAFACKEL* verwirklichen. Im Niederdruckbereich reicht die Anzahl an Stößen der Teilchen für eine Vereinheitlichung der Energie nicht aus und somit weisen die Elektronen deutlich höhere Temperaturen auf als Ionen oder Neutralteilchen. Die mittlere Energie der Elektronen kann einen um drei Zehnerpotenzen höheren Wert aufweisen als die der Ionen und Neutralteilchen (Rutscher und Deutsch 1983).

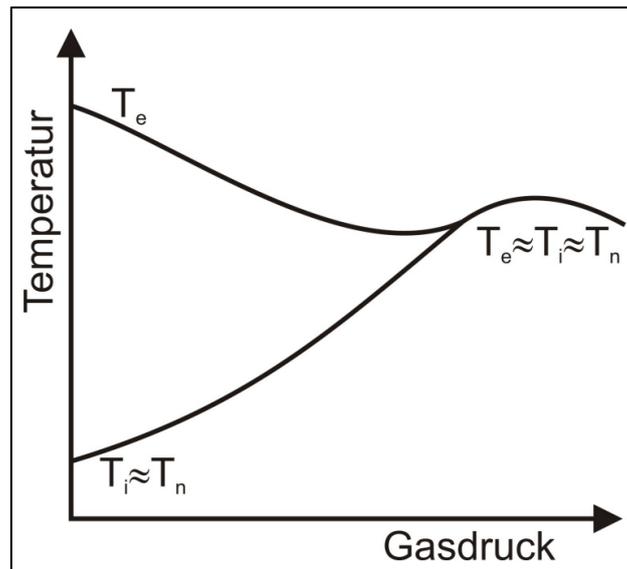


Abbildung 2: Schematisch dargestellter Temperaturunterschied zwischen Elektronen und Ionen/Neutralteilchen in Abhängigkeit vom Gasdruck. T_e ... Temperatur der Elektronen, T_i ... Temperatur der Ionen, T_n ... Temperatur der Neutralteilchen (Janzen 1992); ab dem Punkt $T_e = T_i = T_n$ wird vom thermischen Plasma gesprochen

Die Temperatur steht zur kinetischen Energie der Teilchen in Beziehung und sie ist ein wesentliches Merkmal des Plasmas. Im nichtthermischen Plasma werden Elektronen im elektrischen Feld beschleunigt und durch Elektronenstöße werden chemische Prozesse wie Ionisation, Dissoziation und Anregung in Gang gesetzt. Prozesse mit einer hohen Aktivierungsenergie können realisiert werden, welche auf thermischem Weg nur mit hohem Aufwand oder nicht möglich sind. Aufgrund der geringen Temperaturen der schweren Teilchen kann deren thermischer Zerfall verhindert werden. Anwendung findet die nichtthermische Plasmachemie deshalb bei der Oberflächenbehandlung, Isomerisierung und Eliminierung, Polymerisation und Herstellung reaktiver Zwischenprodukte (Suhr 1972). Wegen der geringeren Anzahl an Zusammenstößen ist der stoffliche Umsatz bei nichtthermischen Plasmen geringer als der bei thermischen (zwischen 1 und 3 % im Vergleich zu 50 bis 80 %). Die Anwendung ist somit auf die Herstellung von Spezialstoffen und Oberflächenbeschichtung limitiert. Im Niederdruck findet vor allem die Oberflächenbehandlung statt, während die chemische Synthese, Oberflächenaktivierung und Abgas-/Abluftbehandlung vor allem im Atmosphärendruck angewandt werden (Rutscher und Wagner 1993; Wagner 2013). Eine spezielle Form des nichtthermischen Plasmas stellen die Mikrowellenplasmafackel (auch Mikrowellenfackel, Mikrowellentorch oder Mikrowellenplasmatorch) und der Gleitlichtbogen dar. Deren Gastemperatur kann eine Größenordnung von mehreren 10^3 K betragen, jedoch ist die Temperatur der Elektronen um eine Zehnerpotenz größer als die Temperatur der Ionen und Neutralteilchen. Das Plasma weist somit Eigenschaften zwischen dem thermischen und dem nichtthermischen Regime auf. Aufgrund des Temperaturunterschiedes der Teilchen wird es zum nichtthermischen Plasma gezählt, obwohl eigentlich die thermische Stoffumwandlung wegen der hohen Gastemperatur überwiegt. Es wird auch vom sogenannten „Übergangspasma“ gesprochen (Fridman 2008; Brandenburg 2019), welches in dieser Arbeit als Mikrowellenplasmafackel zum Einsatz kommt.

2.2 Stand der Technik

Plasmaquellen für Atmosphärendruck können in drei Gruppen klassifiziert werden:

- DC und Niederfrequenzentladungen (hierzu gehören Korona-/Barrierentladungen und Lichtbögen)
- Plasmas, welche mittels RF-Wellen gezündet werden (ICP-Fackel, IST-System zur Oberflächensterilisation)
- Mikrowellenentladungen

Die Vorteile der einzelnen Gruppen sind folgende:

- Das DC-Plasma ist einfach in der Handhabung, kann an Roboter angebracht werden und ist für große Flächen geeignet.
- Das RF-Plasma besitzt keine Elektrode, kann mit sehr großer Leistung arbeiten und Oberflächen schnell behandeln.
- Das Mikrowellenplasma weist eine stabile und homogene Entladung auf und kann für komplexe Oberflächen eingesetzt werden.

Diese Nachteile besitzen die Gruppen:

- Das DC-Plasma ist laut, die Kathode altert, es ist inhomogen und seine Stabilität ist problematisch.
- Das RF-Plasma ist ebenfalls laut, sperrig (das Substrat muss bewegt werden) und es ist ebenfalls inhomogen.
- Das Mikrowellenplasma ist durch den Durchmesser der Quarzröhre limitiert und durch die geschlossene Bauweise wird die Implementierung in Produktionslinien erschwert.

Aufgrund der genannten Vorteile sind DC- und RF-Plasmen in der Industrie am weitesten verbreitet. Das Mikrowellenplasma ist zwar am vielseitigsten einsetzbar, hat sich jedoch wegen der erschwerten Implementierung nicht durchsetzen können (Tendero et al. 2006).

Die Quelle für das Mikrowellenplasma bei Atmosphärendruck ist üblicherweise wie in Abbildung 3 aufgebaut. Als Mikrowellenquelle wird ein Magnetron (1) verwendet. Die Strahlung passiert einen Zirkulator (2) mit angehängter Last an welchem die reflektierte Strahlung absorbiert wird. Als Isolator wird ein Zirkulator mit bereits integrierter Last bezeichnet. Durch einen Tuner (3) wird die Welle durch Mehrfachreflexion in die Plasmabrennkammer (4) geführt. Die Plasmabrennkammer wird auch als Plasmabrenner, Plasmaquelle oder Plasmakomponente bezeichnet. Die Abstimmung zwischen Hohlleiter und Koaxialleiter erfolgt durch einen Kurzschluss-Schieber (auch Abstimmelement oder waveguide genannt) (5). Ein Hohlleiter überträgt die Mikrowellenstrahlung an der Gehäusewand während ein Koaxialresonator durch seine Länge eine stehende Welle erzeugt (Kopecki 2012).

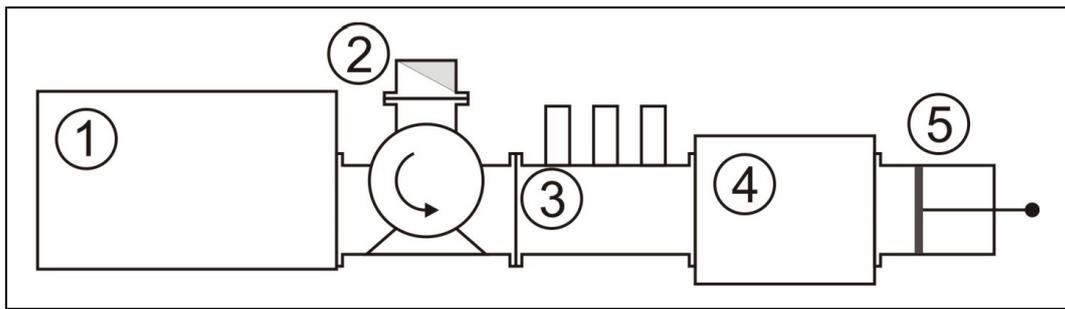


Abbildung 3: üblicher Aufbau einer Mikrowellenplasmaquelle für den Betrieb bei Atmosphärendruck. Magnetron (1), Zirkulator mit Last oder Isolator (2), Tuner (3), Plasmabrenner (4), Kurzschluss-Schieber (5) (Kopecki 2012)

Für die Plasmaquelle existieren beim Betrieb mit 2,45 GHz mehrere Konfigurationen. Sechs dieser Varianten werden in Tabelle 1 verglichen und im weiteren Verlauf näher beschrieben.

Tabelle 1: Literaturbekannte Mikrowellengespeiste Plasmakonfigurationen, die in dieser Arbeit (insbesondere Kapitel 2) vorgestellt werden.

Bezeichnung	Kurzzeichen	Eigenschaften	Literaturreferenz
torche á injection axiale	TIA	kein Quarzrohr; koaxialer Kurzschluss-Schieber; kurze Plasmasäule; Metallspitze; Selbstzündung; einfache Handhabung	Moisan et al. (1994)
Microwave Plasma Torch	MPT	Quarzrohr; keine koaxialer Kurzschluss-Schieber; externe Zündquelle; längere Plasmasäule; keine Metallspitze; keine Selbstzündung	(Jin et al. 1991; Tendero et al. 2006)
Guide-Surfatron	GS	wie MPT mit koaxialem Kurzschluss-Schieber; aufwendige Wasserkühlung	Timmermans et al. (1998) Tendero et al. (2006)
Surfaguide	SAG	wie MPT mit sog. Launcher (unten näher beschrieben)	Moisan et al. (1984)
Der resonatorbasierte Plasmabrenner	RBP	wie MPT mit Resonatorkammer; Selbstzündung beim gepulsten Betrieb der Mikrowellenquelle	Pott et al. (1998) Baeva et al. (2002) Tendero et al. (2006)
atmospheric pressure microwave plasma source	APS	Quarzrohr; kein koaxialer Kurzschluss-Schieber; lange Plasmasäule; Metallspitze; Selbstzündung bei kontinuierlichem Betrieb der Mikrowellenquelle; Hüllluft zur Kühlung	Leins (2010) Schulz et al. (2011) Kopecki (2012)

Die TIA, die MPT, der SAG und der RBP sind in Abbildung 4 schematisch dargestellt. Aus dieser Abbildung lässt sich erkennen, dass es sich beim RBP und beim SAG um Modifikationen der MPT handelt.

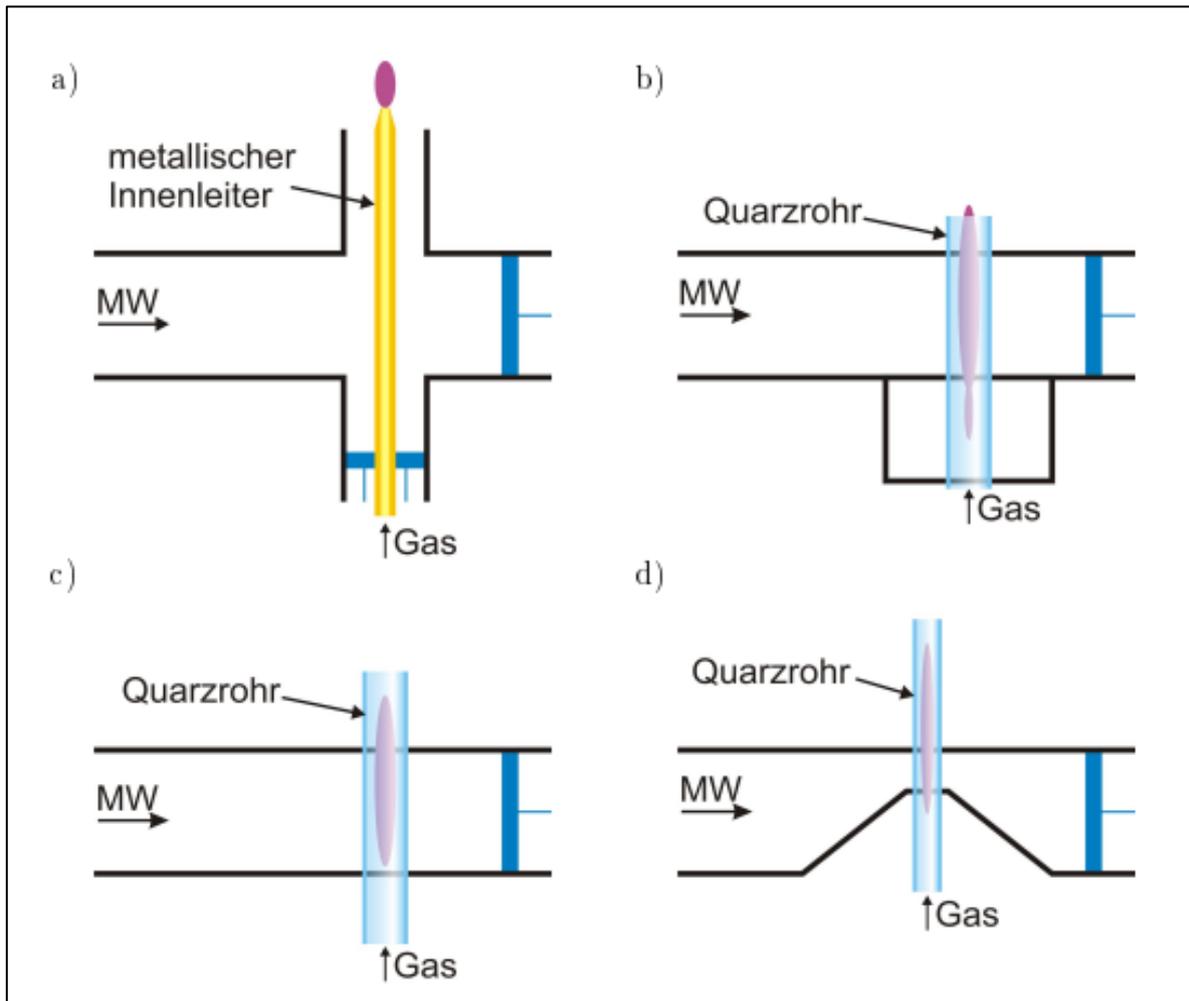


Abbildung 4: Schematische Darstellung TIA (a), RBP (b), MPT (c) und SAG (d) (Kopecki 2012)

Die erste Bauweise ist die erste Kurzschluss-Schieber basierte koaxiale Plasmabrenneranordnung „TIA“ und vollständig aus Metall (kein Quarzrohr). Der Name beschreibt, wie das Gas in die Plasmaquelle gelangt. Das Plasmagas für die Mikrowellenplasmafackel kann relativ zur Fackel axial oder radial injiziert werden. Im radialen Fall gelangt das Plasmagas in den Ringkanal zwischen innerem und äußerem Leiter des koaxial geformten Abschnittes und verlässt diesen durch eine ringförmige Öffnung an der Spitze der Fackel. Das Trägergas (welches das Aufgabematerial beinhaltet) wird schräg zur Fackelachse eingebracht. Im axialen Fall wird das Gas (Plasma- und Trägergas) durch den Innenleiter geleitet und tritt, wie in Abbildung 5, am Ende der Düse aus. Generell gilt, dass eine axiale Anordnung das resultierende Plasma weniger mit Umgebungsluft verdünnt und das Plasma kürzer, aber dichter macht (Moisan et al. 1994).

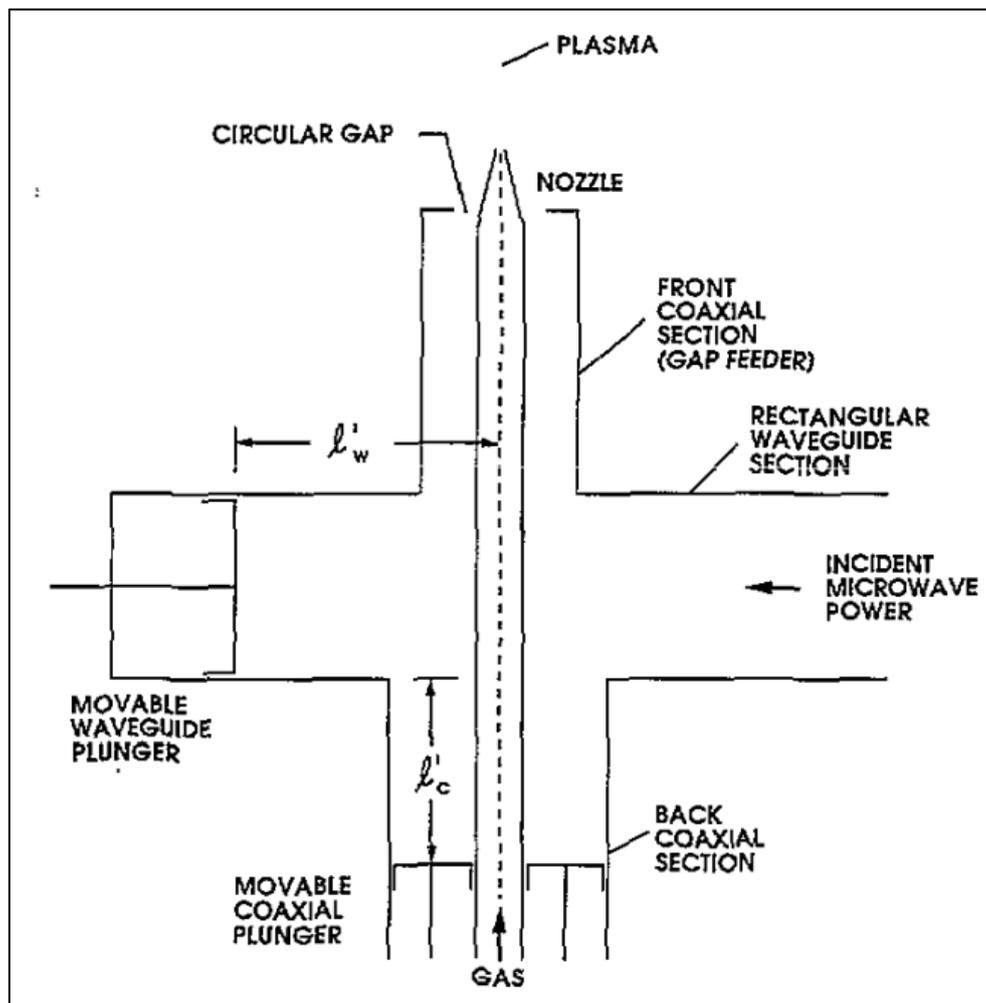


Abbildung 5: Skizze der Kurzschluss-Schieber-basierten koaxialen Plasmabrenneranordnung TIA (Moisan et al. 1994).

Bei der TIA handelt es sich um eine metallische Fackel.

Die einfachste halbmetallische Fackel ist die sogenannte „Microwave Plasma Torch“ (MPT) (Jin et al. 1991). Der Unterschied zur metallischen Fackel besteht in der Ausbreitungsart der elektromagnetischen Wellen. Es gibt keinen Übergang vom Hohlleiter zum Koaxialresonator (auch Koaxialleiter genannt). Bei einer halbmetallischen Fackel wird die Entladung in der Zone initiiert, wo sich das Quarzrohr mit dem rechteckigen Hohlleiter schneidet, statt das Gas auf der Düsen Spitze zu Zünden. (Woskov und Hadidi 2002). Der GS (Abbildung 6), der SAG (Abbildung 7) und der RBP (Abbildung 8 und Abbildung 9) sind Weiterentwicklungen des MPT und somit auch halbmetallische Fackeln.

Das GS-Design besitzt wie die TIA einen koaxialen Kurzschluss-Schieber (und ist somit die zweite und letzte Kurzschluss-Schieber basierte koaxiale Brenneranordnung). Die MPT besitzt diesen koaxialen Kurzschluss-Schieber nicht.

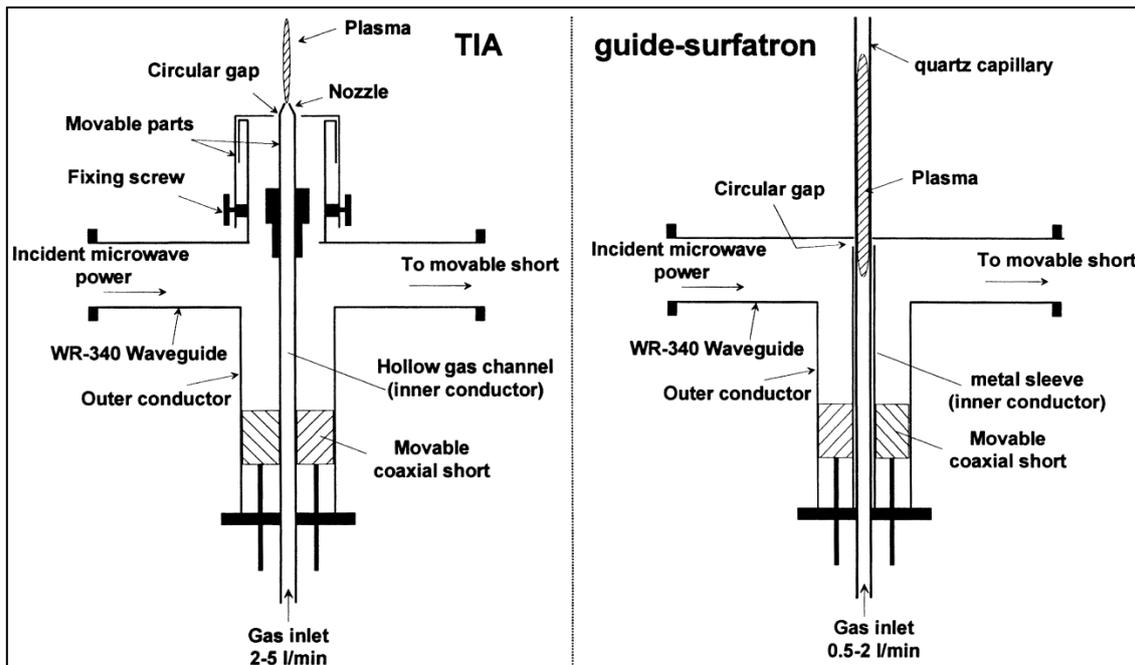


Abbildung 6: Vergleich der Gestaltung eines GS (rechts) mit der einer TIA (links) (to movable short führt zum Kurzschluss-Schieber) (Timmermans et al. 1998)

Im GS wandern die Mikrowellen an der Oberfläche des Hohlleiters und gelangen in das Quarzrohr (analog zu den Mikrowellen der MPT, des SAG und des RBP). Dieses ist für Mikrowellenstrahlung durchsichtig. Die Mikrowelle wandert anschließend entlang der Schnittstelle zwischen Quarzrohr und Plasma, dies ermöglicht das Erzeugen einer höheren Plasmasäule (siehe Abbildung 6) (Tendero et al. 2006).

Der SAG ist die nächste Brennerart, welche vorgestellt wird. Im Gegensatz zur MPT besitzt der SAG im Schnittpunkt mit dem Quarzrohr einen schmaleren Querschnitt (wird als Launcher bezeichnet, in Abbildung 7 ersichtlich). Der Bereich des engeren Querschnittes (verglichen mit dem Hohlleiter) wird als „Launcher“ bezeichnet. Der Launcher sorgt für eine höherer Elektronendichte und längere Plasmasäule (Moisan et al. 1984).

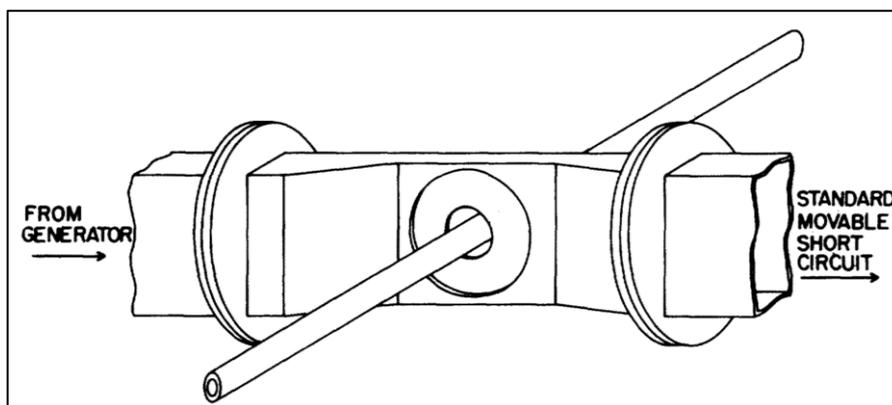


Abbildung 7: Skizze eines SAG-launchers (Moisan et al. 1984)

Die Kosten für den Betrieb des GS und des SAG können mit mehreren Mikrowellenplasmafackeln in Linie und Wolframzündern niedrig gehalten werden (ein

Magnetron mit 800 bis 1000 W wie es im Haushalt verwendet wird ist bereits ausreichend für die Speisung bzw. die Aufrechterhaltung des Plasmas) (Hong et al. 2004). Die MPT, der GS und der SAG brauchen immer eine äußere Zündquelle.

Eine Weiterentwicklung dieser Fackeln ist der RBP. Dieser besitzt eine Resonator-kammer (Zylinderresonator, Abbildung 8). Diese ermöglicht dem RBP eine Selbstzündung des Plasmas innerhalb einer Quarzröhre beim gepulsten Modus der Mikrowellenquelle. Das Plasmagas strömt im Rohr als überlagerter Vortex. Dies stabilisiert die Entladung und wirkt gegen ein Brennen der Rohrwand (Pott et al. 1998; Baeva et al. 2002; Tendero et al. 2006). Der prinzipielle Aufbau eines RBP ist in Abbildung 8 und Abbildung 9 zu finden.

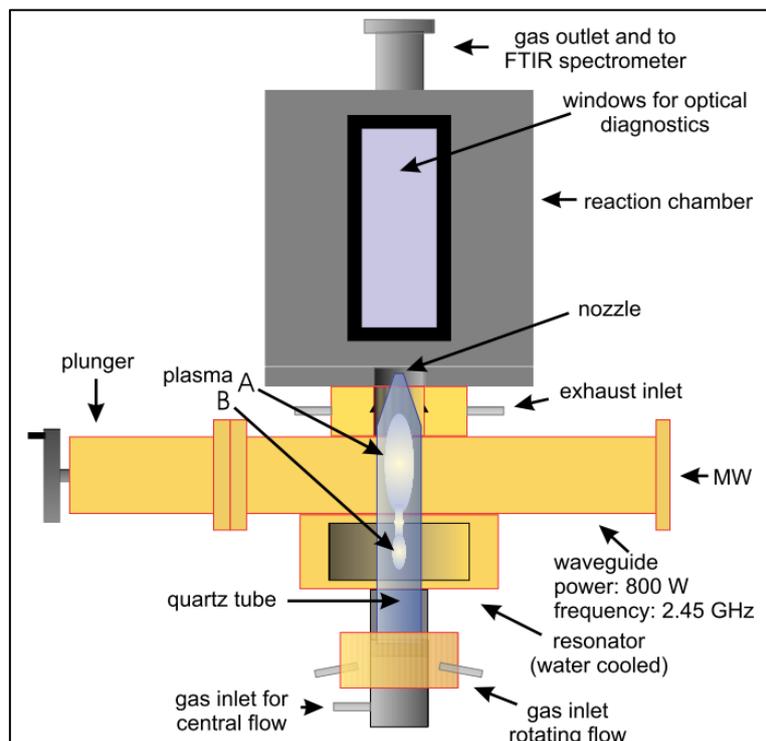


Abbildung 8: RBP mit Resonator-kammer (Pott et al. 1998)

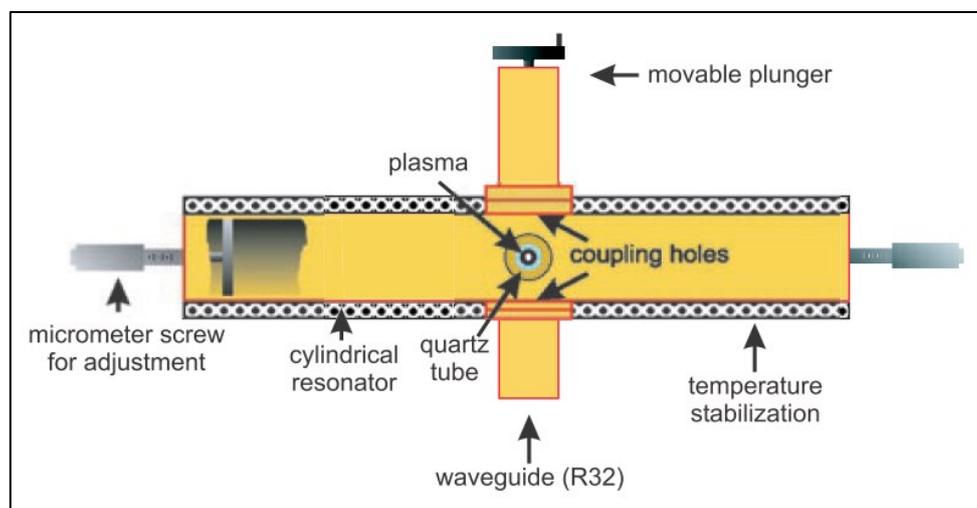


Abbildung 9: RBP (Baeva et al. 2002)

Alle vorher erwähnten Plasmabrenner weisen Nachteile auf, welche sie für eine industrielle Anwendung nur eingeschränkt brauchbar machen. Ein Nachteil des TIA-Brenners ist, dass er nur eine sehr kleine Plasmaflamme erzeugen kann. Aufwändig beim SAG ist, dass ein komplexes Kühlungssystem für die Quarzröhre benötigt wird. Ein weiterer Kritikpunkt ist, dass die bisher vorgestellten Brenner AC Funken oder Brennermodule für eine Zündung brauchen bzw. dass der RBP nur im gepulsten Modus betrieben werden kann (Pott et al. 1998; Baeva et al. 2002; Hong et al. 2005).

Ein industriell einsetzbarer Plasmabrenner sollte in der Handhabung einfach sein und große Gasdurchsätze vertragen. Um dies zu ermöglichen, wurde an der Universität Stuttgart (am Institut für Plasmaforschung (IPF)) eine atmosphärisch betreibbare Plasmaquelle, das APS, vorgestellt (Abbildung 10).

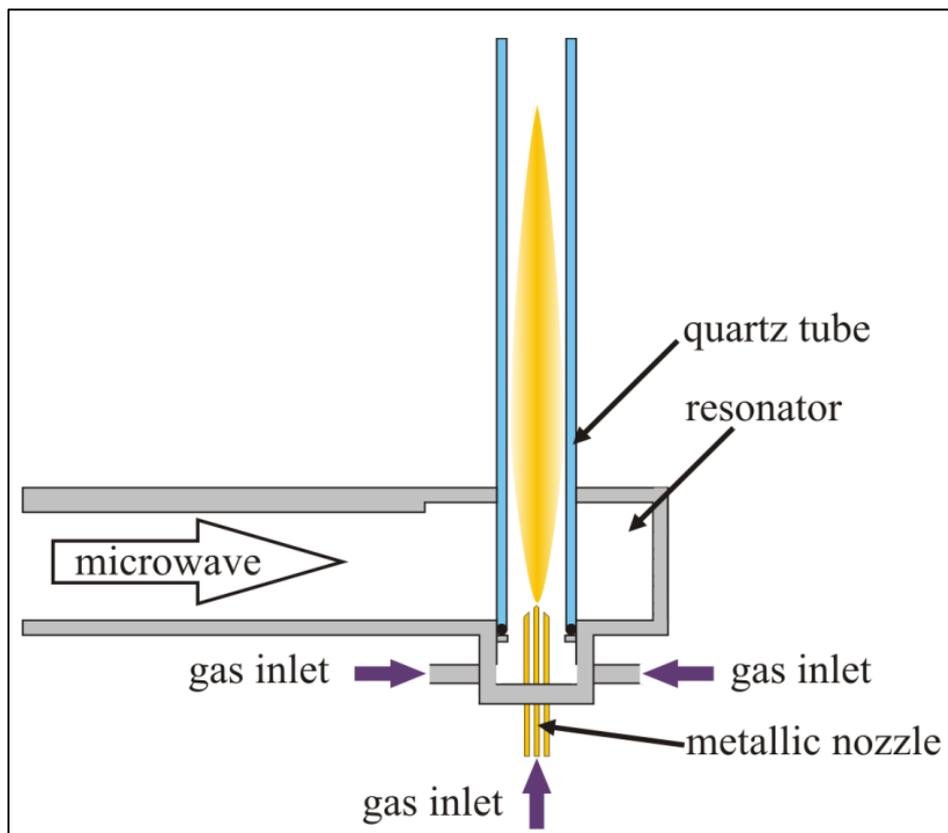


Abbildung 10: Schematische Darstellung der APS (Leins 2010)

Dies ist die letzte Bauweise, die im Einleitungskapitel dieser Arbeit präsentiert wird. Das APS basiert auf einem axial symmetrischen Hohlraum, welcher als Resonator fungiert (Zylinderresonator, wie beim RBP). Mittels rechteckiger Hohlleiter wird Mikrowellenstrahlung in diesen Hohlraum gespeist. Der Durchmesser der Glasröhre muss kleiner sein als die halbe Wellenlänge der Mikrowellenstrahlung, um ein Entweichen dieser zu verhindern. Eine Metalldüse, welche den coaxialen Teil unterhalb des Resonators darstellt, wird zum Einbringen des Plasmagases benötigt. Durch die coaxiale Struktur der Düse wird diese zum zweiten Resonator. Dies macht das APS zu einer metallischen Fackel. Das Hüllgas strömt tangential an der Düse ein, somit wird ein Drall erzeugt, welcher die Stabilität des Plasmas erhöht (Leins 2010). Die Düse sollte eine Höhe von ca. $\lambda/4$ besitzen und wenige Millimeter in den Resonator

ragen (Schulz et al. 2011). Die geringe Höhe der Spitze des Koaxialresonators im Zylinderresonator sorgt für eine schmalbandige Ankopplung. Somit ist die Zündung des Plasmas bei Atmosphärendruck in Luft möglich. Der Zylinderresonator ist breitbandig und ermöglicht die Nutzung eines Großteils der Leistung, welche von der Mikrowelle eingebracht wurde. Diese Bauweise besitzt nicht die Nachteile der bisher erwähnten Brennertypen. Durch den koaxialen Resonator ist eine direkte Zündung (wie beim TIA) möglich und anstelle des Kurzschluss-Schiebers besitzt sie einen abgestimmten Zylinderresonator (wie der RPB). Das Quarzrohr in der Brennermitte schließt das Plasma ein und wird mit einem Hüllluftstrom gekühlt (Kopecki 2012). Im Verlauf dieser Arbeit liegt der Fokus, aufgrund der viele Vorteile der APS gegenüber den anderen Plasmabrennertypen, auf dieser zuletzt genannten Brennerausführung.

3 Versuchsdurchführung

Die gewählten Mikrowellenkomponenten sind für eine Frequenz von 2,45 GHz ausgelegt und verwenden als Hohlleiter WR340 Dimensionen (Standard cpr340f). Alle verwendeten Geräte sind im Anhang gelistet. Das ALTER-Netzteil (Generator) wird in Verbindung mit einem HITACHI-Magnetron und einem RATHGEBER-Transformator verwendet (siehe Abbildung 11). Der Verschaltungsplan ist im Anhang zu finden. Das MUEGGE-Netzteil (Generator) und der dazugehörige MUEGGE-Magnetronkopf besitzen eigene Verbindungsstecker, welche bei diesen Geräten nicht vorhanden sind. Da es sich nicht um handelsübliche Standardstecker handelt, sind diese schwer erhältlich und besitzen sehr lange Lieferzeiten. Dies führt dazu, dass ein Test des MUEGGE-Gerätes im Rahmen dieser Arbeit unpraktikabel ist und nur mit dem ALTER-Setup gearbeitet wird. Zur Strahlungsmessung/Strahlungsdetektion wird ein Strahlungsmessgerät PCE-EM29 (Handmessgerät) und Schottky-Dioden von ALAN verwendet.

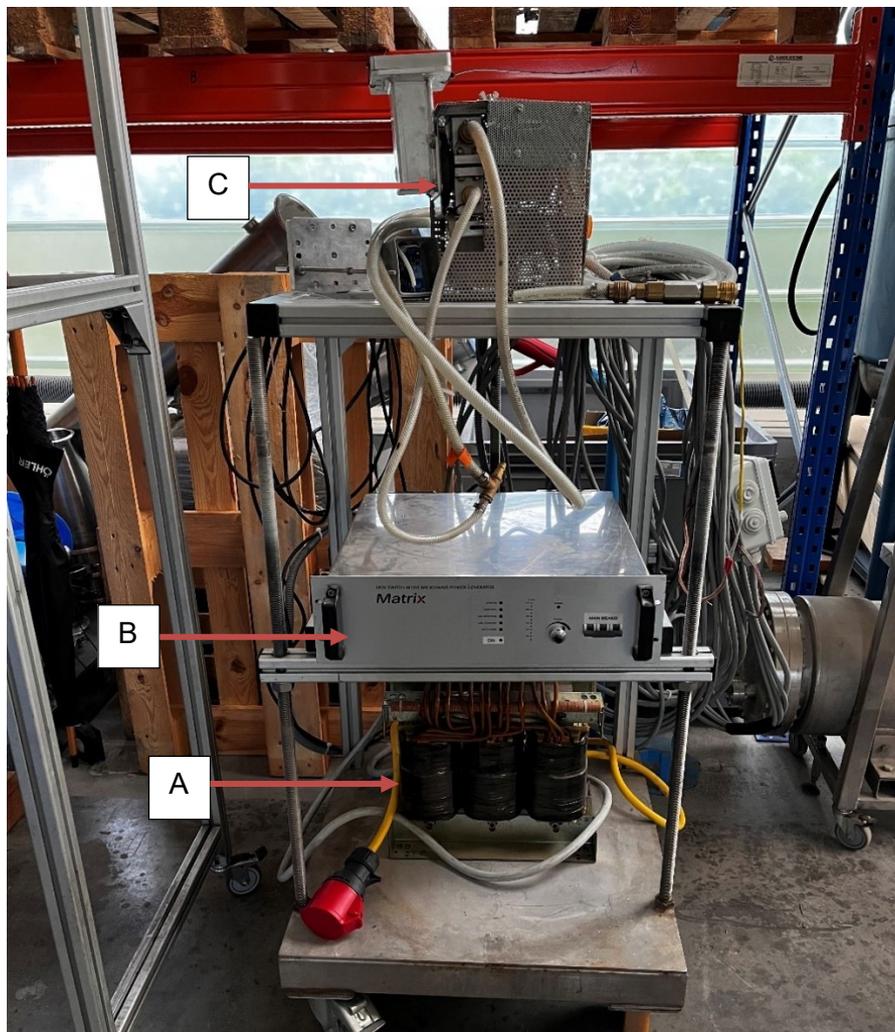


Abbildung 11: ALTER-Setup RATHGEBER-Transformator (A), ALTER-Netzteil (Generator) (B), HITACHI-Magnetron (C)

Die eingestellten Parameter der Versuche lassen sich aus Tabelle 2 und Tabelle 3 herauslesen.

Tabelle 2: Parameter am Netzteil und Magnetron zum Einstellen der abgegebenen Mikrowellenleistung

Versuch	ALTER-Netzteil-Stufe bei max. 10 Stufen und 5 kW	Potentiometereinstellung am HITACHI-Magnetron [%]
Funktionstest	5	70
TIA	2	40
APS	2	40
Schmelzversuch 1	2	40
Schmelzversuch 2	5	20

Beim Funktionstest wird weder Argon (Plasmagas) noch Druckluft (Hüllgas) benötigt. Beim TIA-Versuch wird nur Argon benötigt und alle Versuche mit der APS-Brennkammer benötigen Argon und Druckluft. Sowohl für das Argon als auch für die Druckluft wird für alle Versuche ein Volumenstrom von ca. 30 L/min gewählt. Dies erzeugt ein hörbares leichtes Zischen.

Tabelle 3: Parameter am RODOS zum Einstellen des Argon Volumenstromes und der Aufgabegeschwindigkeit der Probe

Versuch	Druck in der Argonleitung [bar]	RODOS-Druck [bar]	RODOS-Druckdifferenz [bar]
Schmelzversuch 1	2,5	0,21	0,10
Schmelzversuch 2	2,5	0,21	0,1

Die abgegebene Mikrowellenleistung kann mithilfe des Anodenstromes aus Abbildung 12 herausgelesen werden. In Tabelle 4 werden der gemessene Anodenstrom und die gemessene Anodenspannung, sowie die Abweichung der Anodenspannung vom theoretischen Wert und die entsprechend abgegebene Mikrowellenleistung der durchgeführten Versuche dargestellt.

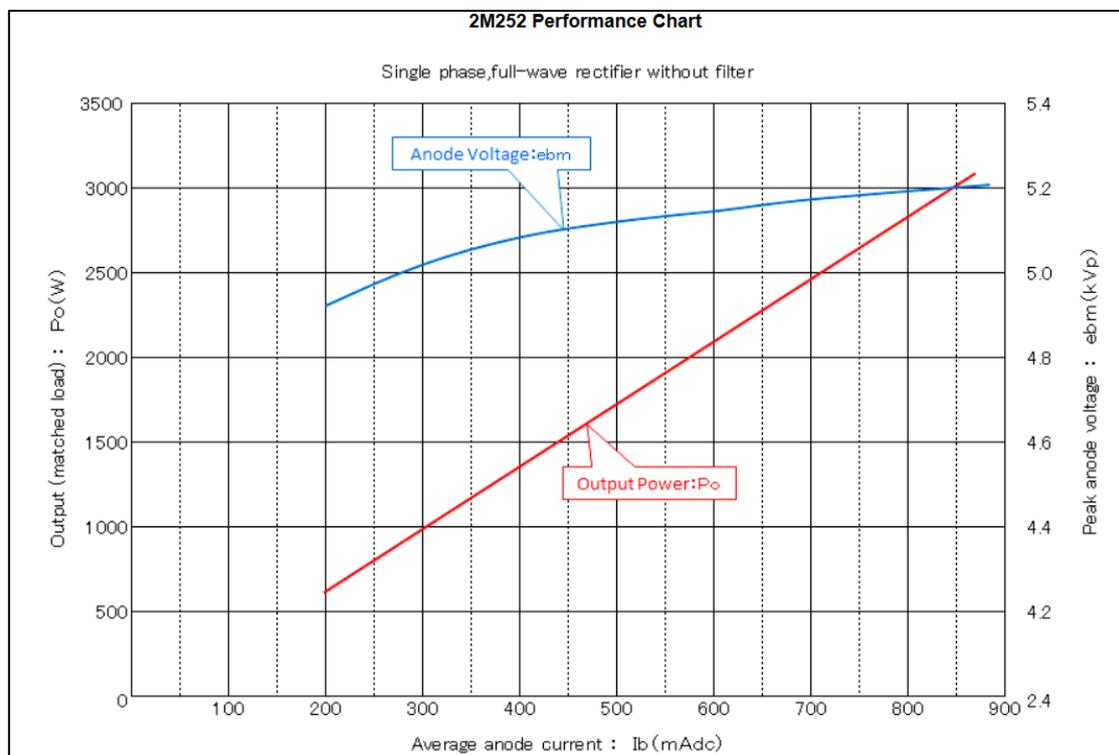


Abbildung 12: abgegebene Mikrowellenleistung in Abhängigkeit zum Anodenstrom (Hitachi)

Tabelle 4: Gemessener Anodenstrom und gemessene Anodenspannung sowie Anodenspannung und die entsprechende abgegebene Mikrowellenleistung laut Abbildung 12 für die durchgeführten Versuche

Versuch	Anodenstrom gemessen [mA]	Anodenspannung gemessen [kV]	Anodenspannung laut Abbildung 12 [kV]	Output Leistung laut Abbildung 12 [kW]
Funktionstest	900	4,7	5,2	3,20
TIA	400	4,5	5,1	1,35
APS	400	4,5	5,1	1,35
Schmelzversuch 1	400	4,5	5,1	1,35
Schmelzversuch 2	660	4,5	5,1	2,30

3.1 Vorversuche

Zur Überprüfung der Funktionsfähigkeit wird das Setup wie in Abbildung 3 aufgebaut, jedoch wird statt der Plasmakomponente und dem Kurzschluss-Schieber ein runder Hohlleiter mit geöffneter Versuchskammer verwendet. Da der Querschnitt des Hohlleiters zur Überprüfung der Funktionsfähigkeit irrelevant ist, wird der bereits vorhandene, runde Hohlleiter der Versuchskammer belassen. Die Versuchskammer wird geöffnet, damit die abgegebene Strahlung mit dem Handmessgerät gemessen werden kann. Dieser Aufbau ist in Abbildung 13 ersichtlich. Das Ziel ist die Detektion der Mikrowellenstrahlung bei eingeschaltetem Generator (Anstieg der Leistung beim Handmessgerät und der Spannung an der Schottky-Diode).



Abbildung 13: Mikrowellensetup zur grundlegenden Überprüfung der Funktionstüchtigkeit des Mikrowellengenerators (von links nach rechts: Hohlleiter, Zweistifttuner, Isolator, Magnetron)

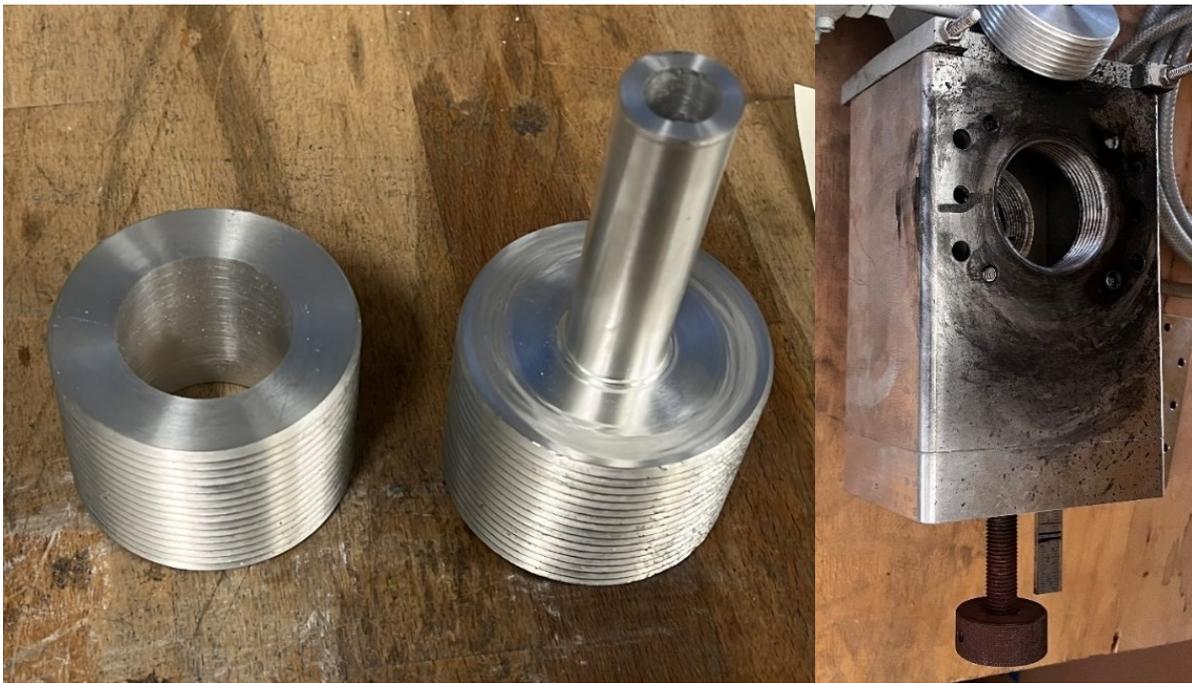


Abbildung 15: Aluminiumgehäuse TIA-Brennkammer (in Abbildung 14 orange dargestellt),
Gehäuseschrauben (links und mittig), Gehäuse (rechts)

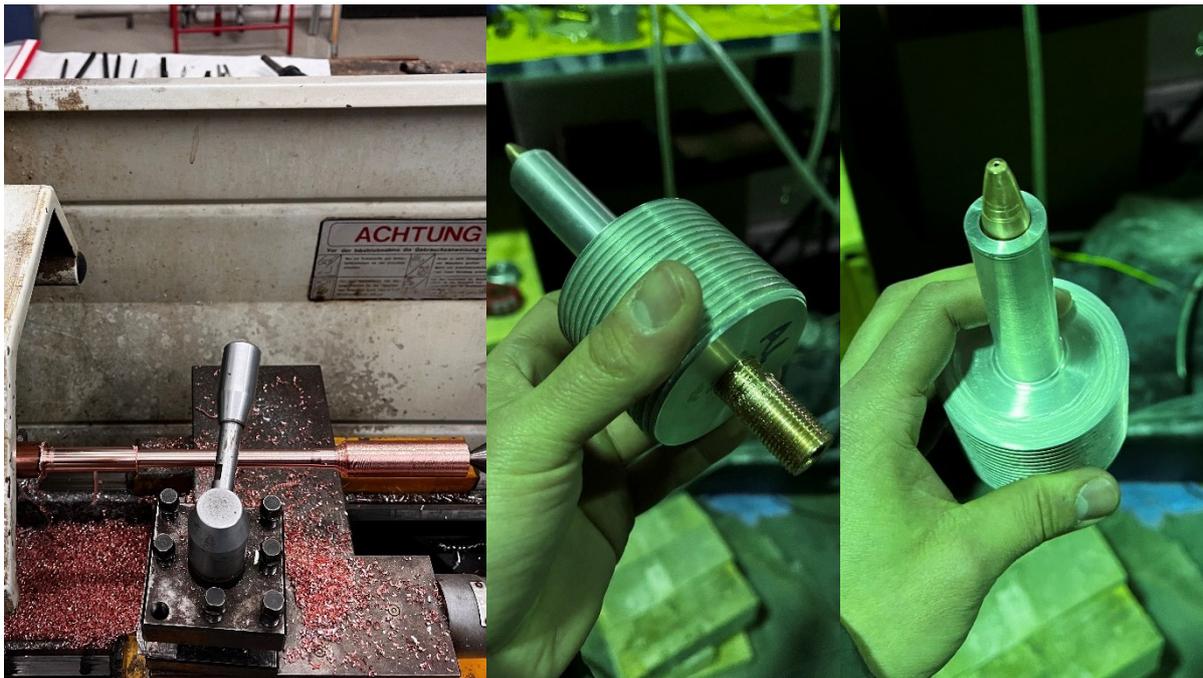


Abbildung 16: Kupferspitze TIA-Brennkammer (in Abbildung 14 gelb dargestellt) bei der Anfertigung
(links) und in der Gehäuseschraube verbaut (mittig und rechts)

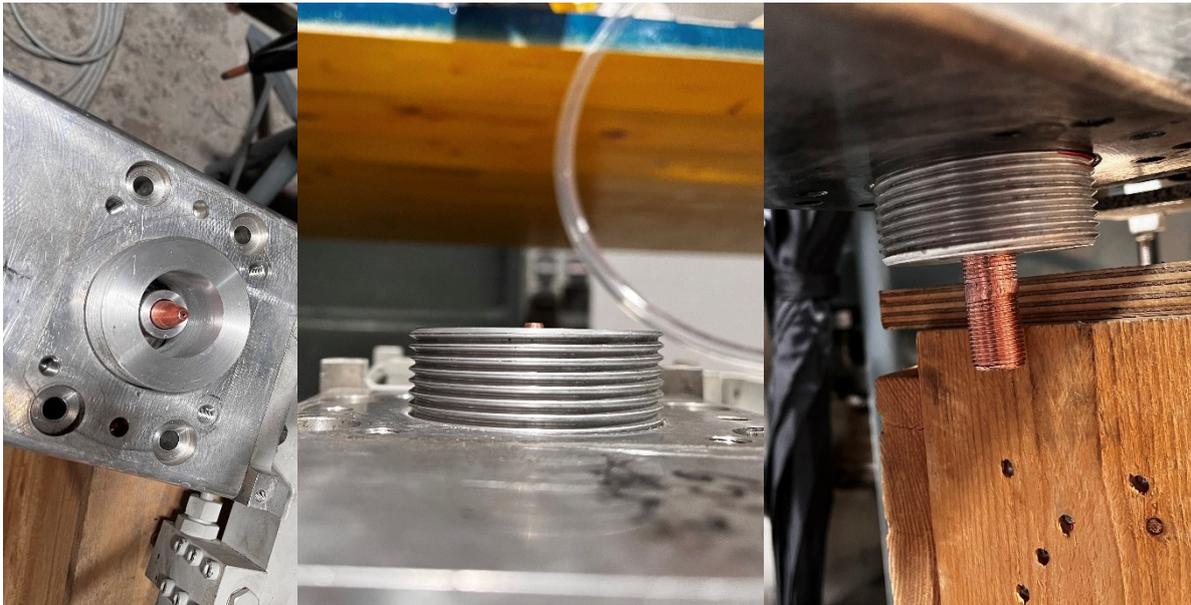


Abbildung 17: Kupferspitze mittels Aluminiumgehäuseschrauben verbaut im Aluminiumgehäuse von oben (links und mittig) und von unten (rechts)

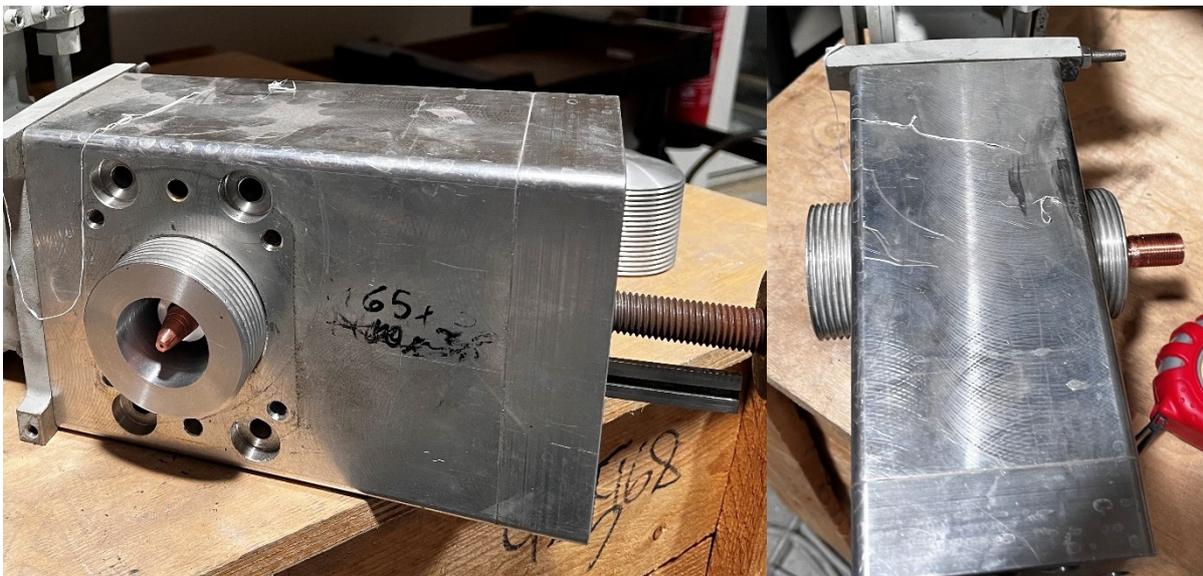


Abbildung 18: Fertig zusammengebaute TIA-Brennkammer (mit integriertem Kurzschluss-Schieber)



Abbildung 19: Fertiges TIA-Setup: Koppellement mit Brennkammer, Zweistifttuner, Isolator, Magentron (von links nach rechts)

3.1.2 APS

Die genauen Maße der Brennkammer befinden sich im Anhang (die Maße werden der Arbeit von Leins (2010) entnommen). Für diese Versuche werden Brennkammer und Tuner gewechselt (Dreistift statt Zweistift). Zwischen dem Tuner und der Brennkammer wird ein Koppellement verbaut (5 mm hoher Spalt mit der Breite vom WR340 Flansch und einer Tiefe von einem Viertel der Wellenlänge ($\lambda/4$) also ca. 43 mm). Dies hat den Zweck, die Fokussierung der Mikrowellenstrahlung zu verbessern, was eine höhere Plasmatemperatur bei geringerer Leistung ermöglicht (Leins 2010). Als Plasmagas fungiert wie bei der TIA-Brennkammer Argon. Aus der Brennkammer ragt eine Quarzröhre, in welcher sich das Plasma befindet. Die Röhre besitzt eine Gesamtlänge von 30 cm und einen Außendurchmesser von 40 mm. Dieser Durchmesser ist größer als der von Leins (2010), jedoch kleiner als der maximal zulässige von einer halben Wellenlänge (damit die Mikrowellenstrahlung nicht aus der Brennkammer entweicht). Diese Röhre sorgt, in Kombination mit einem Tangentialstrom (Hüllgas, verwendet wurde Druckluft), für die Beeinflussung der Form und Ausprägung des Plasmas. Des Weiteren schützt das Hüllgas die Quarzröhre vor dem Plasma. Der Zylinderresonator mit dem Koppellement ist in Abbildung 20, Abbildung 22 und Abbildung 23 zu finden. In Abbildung 21 ist der Koaxialresonator abgebildet. Abbildung 24 zeigt das fertig aufgebaute APS-Setup. Ein Blockfließbild der APS-Anordnung ist in Abbildung 28 zu finden.

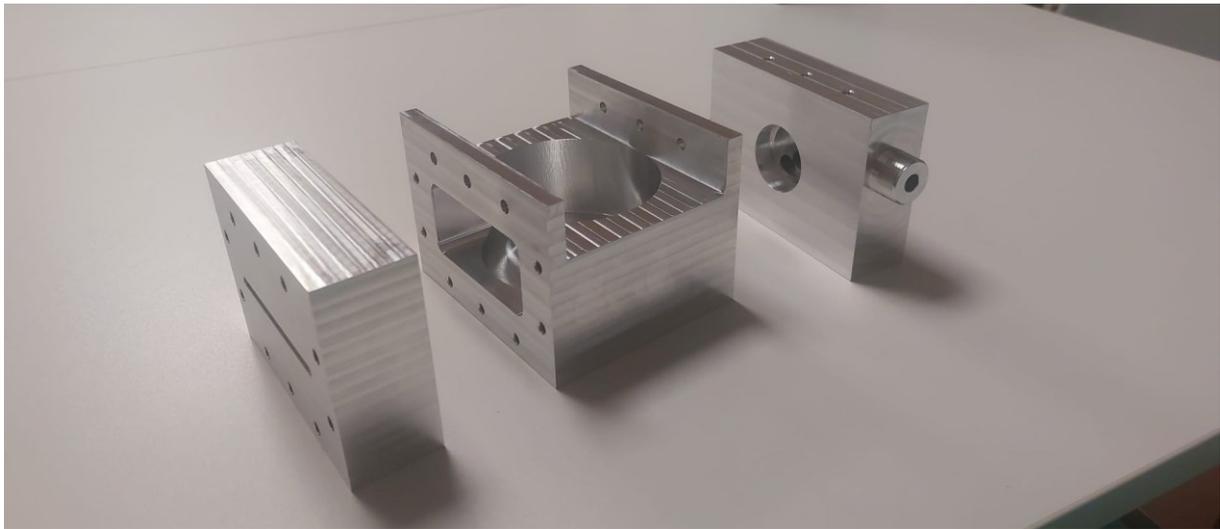


Abbildung 20: Koppелеlement- $\lambda/4$ WR340 (links), APS-Zylinderresonator WR340 die Unterseite befindet sich oben (mittig), APS-Zylinderresonatorboden mit Hüllgasinlet (rechts)

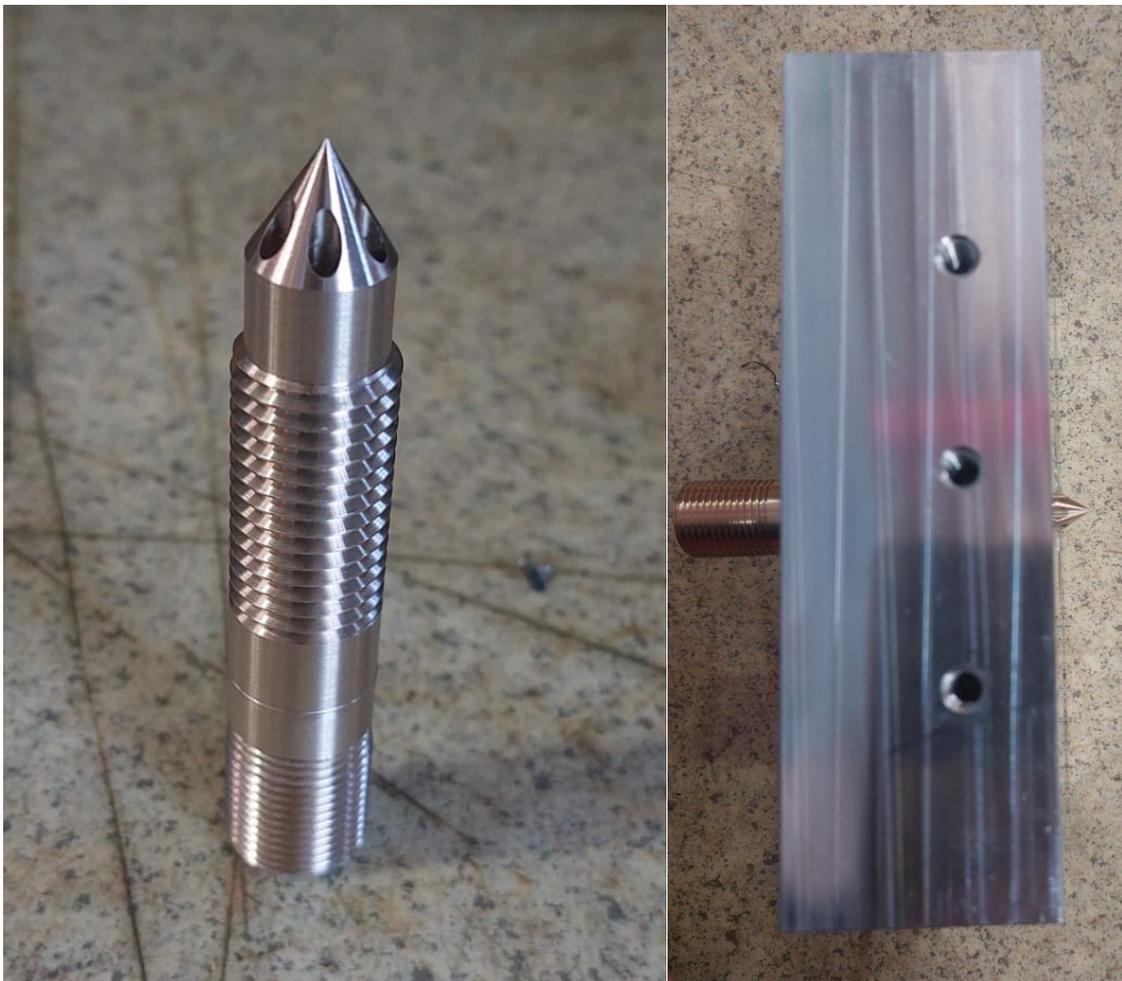


Abbildung 21: APS-Koaxialresonator mit Plasmagasinlet (links) Koaxialresonator verbaut im Zylinderresonatorboden (rechts)



Abbildung 22: Zusammengebauter APS-Zylinderresonator mit Quarzröhre, verschraubt mit einem Dreistifttuner

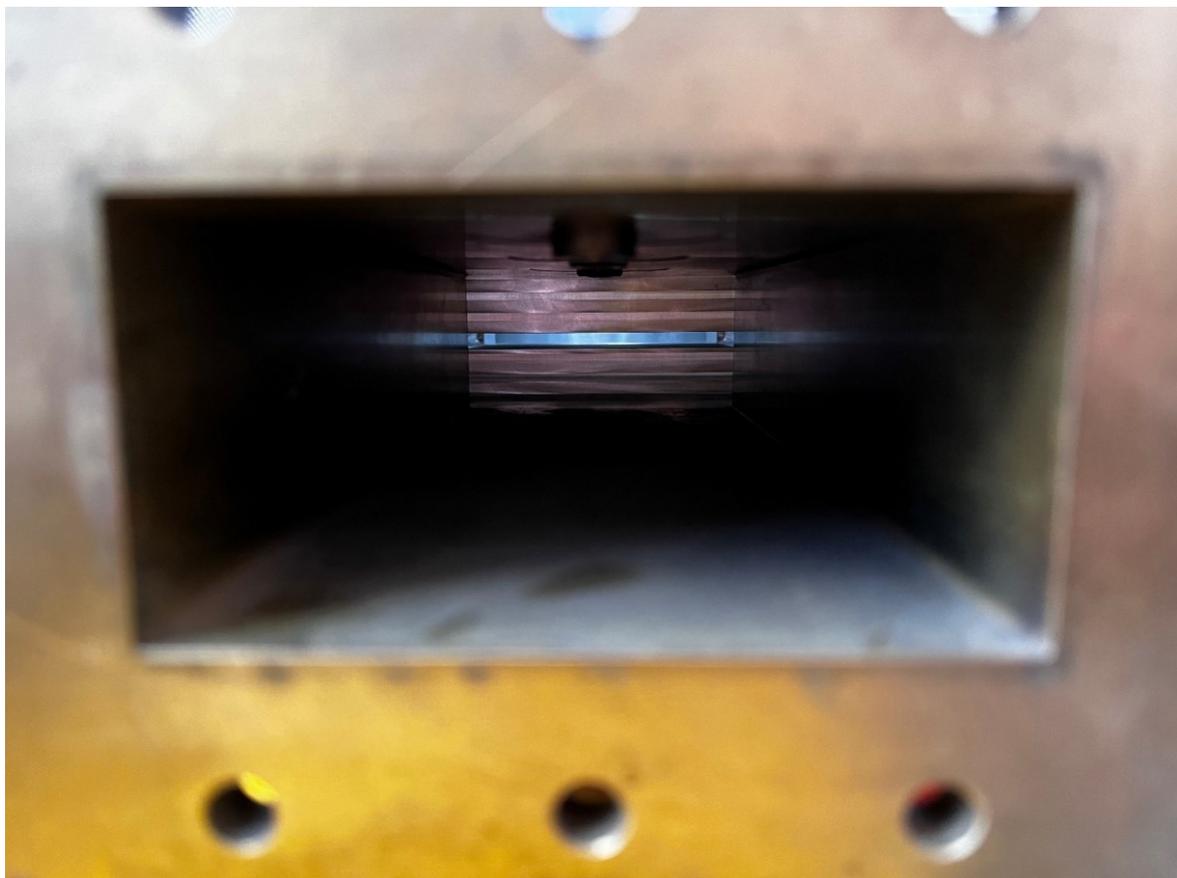


Abbildung 23: Blick durch den Dreistifttuner vom Magnetronende (Position des Isolators), Beobachteter Spalt ist das Koppellement- $\lambda/4$ und dahinter der Zylinderresonator der APS-Brennkammer



Abbildung 24: Fertiges APS-Setup: APS-Brennkammer, Dreistifttuner, Isolator, Magnetron (von links nach rechts)

3.1.3 Probenwahl

Zur Probenaufgabe wird das RODOS T4.1 (dies ist die Probenaufgabe vom Laserbeugungsmessgerät HELOS) unter Einsatz einer LABORATORY POWER SUPPLY PS-405D verwendet. Am VIBRI (gehört zur Probenaufgabe vom RODOS) wird das Verhalten der Proben (Fließverhalten, Aufgabegeschwindigkeit) in Abhängigkeit zur eingetragenen Leistung der Rüttelrinne beobachtet. Aufgefangen werden die Feststoffteilchen durch einen Staubsauger mit vorgeschaltetem Zyklon. Bei der eingesetzten Probe handelt es sich um Aluminiumoxid (Al_2O_3) $\geq 99\%$, rein, α -Phase und Zirkonoxid (ZrO_2). Diese werden aufgrund ihrer Schmelzpunkte und ihrer Verfügbarkeit für die anschließenden Schmelzversuche gewählt. Die Schmelzpunkte und Dichten der Materialien sind in Tabelle 5 ersichtlich. Das Ergebnis dieser Versuche ist in Kapitel 4.4 Charakterisierung des Pulverfeedstroms zu finden.

Tabelle 5: Schmelzpunkt und Dichte der verwendeten Probenmaterialien

	Schmelzpunkt [°C]	Dichte $\left[\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}\right]$	Molare Masse $\left[\frac{\text{g}}{\text{mol}}\right]$	Bezugsquelle
Al_2O_3	2050	3,97	101,94	CARLROTH
ZrO_2	2680	5,85	123,22	IFA

3.2 Schmelzversuche

Die zwei möglichen Varianten zur Aufgabe von Feststoffproben in das Plasma sind eine axiale und eine radiale Aufgabe. Der Vorteil der radialen Methode besteht darin, dass schwerere Teilchen weiter in das Plasma eindringen und leichtere schon vorher vom Gasstrom mitgerissen werden. Dies führt zu einer Anpassung der Verweilzeit im Plasma, abhängig von der Größe der Teilchen. Gewählt wird aufgrund der leichteren Realisierbarkeit die axiale

Methode. Um die Handhabung der Pulverproben zu optimieren, wird die Brennkammer um 180° gedreht (Koaxialresonator mit Argonanschluss oben und Quarzglas mit Plasmaflamme unten). Abbildung 25, Abbildung 26 und Abbildung 27 zeigen den Aufbau der APS-Brennkammer, die Auffangvorrichtung für das Produkt und die Probenaufgabevorrichtung für die Schmelzversuche der Pulverproben. In Abbildung 28 ist ein Blockfließbild der APS-Anordnung dargestellt.

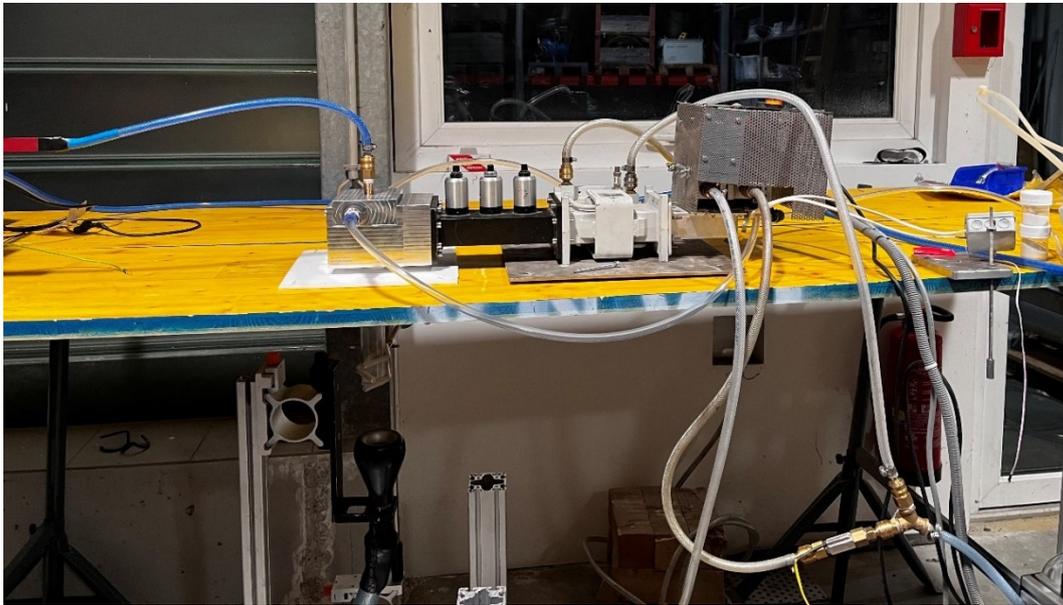


Abbildung 25: Fertiges Setup für die Schmelzversuche: APS-Brennkammer 180° verdreht (Fackel zeigt nach unten), Dreistifttuner, Isolator, Magnetron (von links nach rechts)



Abbildung 26: Auffangvorrichtung für das Produkt, Zyclon mittels Staubsauger betrieben



Abbildung 27: Probenaufgabe für Feststoffproben RODOS, Probenaufgabegas mittels dem Plasmagas Argon

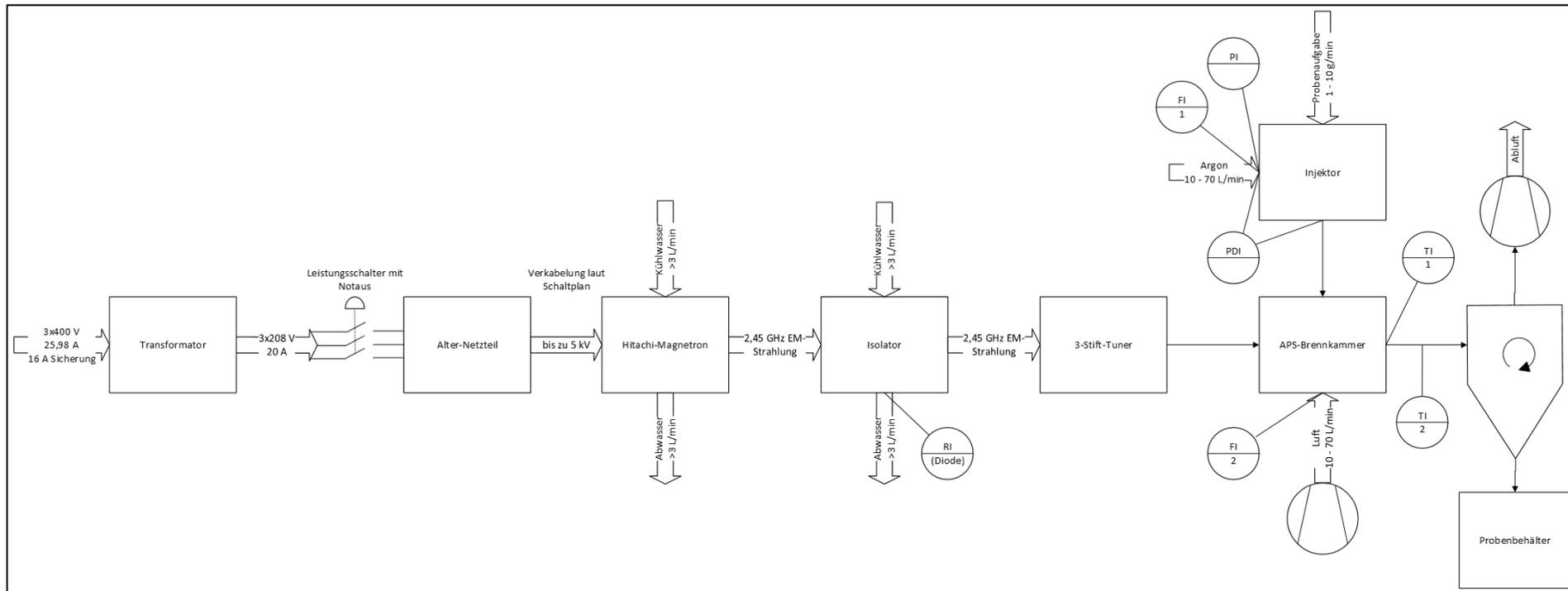


Abbildung 28: Blockfließbild der APS-Anordnung

4 Ergebnisse und Diskussion

Bei dem grundlegenden Funktionstest ist auffällig, dass der Magnetronkopf nur eingeschaltet werden kann, wenn der Spark-Detektor (Photowiderstand) abgedunkelt wird. An diesem Versuchstag ist der Raum stark durch Sonnenlicht ausgeleuchtet. Der Spark-Detektor ist demnach sehr empfindlich und kann nicht an einer beliebigen Stelle angebracht werden. Des Weiteren wird festgestellt, dass sich das Mikrowellenplasma-Setup nicht einschalten lässt, wenn das Gerät in kurzen Abständen öfter ein- und ausgeschaltet wird.

4.1 Arbeitssicherheit

Um ein schnelles und sicheres Abschalten des Mikrowellensetups zu ermöglichen, wird zwischen dem Transformator und dem Netzteil ein Leistungsschalter mit Notastaste verbaut (ersichtlich in Abbildung 31). Da die Augen besonders empfindlich auf Mikrowellenstrahlung reagieren (schlechte Wärmeabfuhr, keine ausreichende Wärmewahrnehmung (Muegge GmbH 2004)), wird die Mikrowelle nur unter Verwendung einer Schutzbrille (Drahtbrille für Mikrowellen-Therapie) eingeschaltet und betrieben. Die Brille wirkt als Faraday'scher Käfig und führt die Strahlung an den Augen vorbei auf die Haut. Da die Haut über ausreichend Wärmewahrnehmung verfügt, wird die Erwärmung spürbar, bevor sie beginnt gefährlich zu sein. Vor dem Überprüfen der Funktionsfähigkeit wird der gesamte Apparateteil ab dem Magnetron in einem Faraday'schen Käfig eingeschlossen, wie in Abbildung 13 und Abbildung 31 zu erkennen ist. Der Käfig wird aus Streckmetallblech mit den Lochdimensionen (rautenförmiges Loch) von 6 mm und 3,4 mm gefertigt (Materialstärke: 1,2 mm, Abstand zwischen den Löchern: 0,6 mm). Die Maschenweite liegt unter einem Zehntel der Wellenlänge. Das entspricht der Mindestanforderung für eine Abschirmung (Feynman et al. 2010; Schwab 1996). 10 W/m^2 ist, laut OVE-Richtlinie R 23-1, der höchstzulässige Wert für die Strahlungsemission einer Frequenz von 2,1 bis 3,5 GHz. Da sich die Strahlungsemission unter dem Grenzwert befindet (schwankend im Bereich von 50 bis 200 mW/m^2), wird die Strahlung erneut, diesmal ohne Faradaykäfig, gemessen. Die Strahlung befindet sich weiterhin unter dem Grenzwert (schwankend $0,5$ bis 2 W/m^2). Am offenen Ende des Versuchsaufbaus, in Abbildung 31 rot markiert, wird die Strahlungsemission erneut gemessen. Der Emissionswert befindet sich über dem Messbereich des Handmessgerätes ($>30,93 \text{ W/m}^2$). Die Schottky-Diode ist am Isolator angebracht und zeigt einen Wert von $-1,5 \text{ V}$ für die reflektierte Strahlung an. Zur Veranschaulichung ist ein Diagramm mit Leistung und zugehöriger Spannung der MUEGGE-Diode in Abbildung 29 dargestellt, verwendet wird jedoch die baugleiche Diode von ALAN. Die Messungen werden für beide Brennkammern wiederholt. Die Ergebnisse dieser sind in den entsprechenden Kapiteln (4.2 TIA-Plasma und 4.3 APS-Plasma) zu finden.

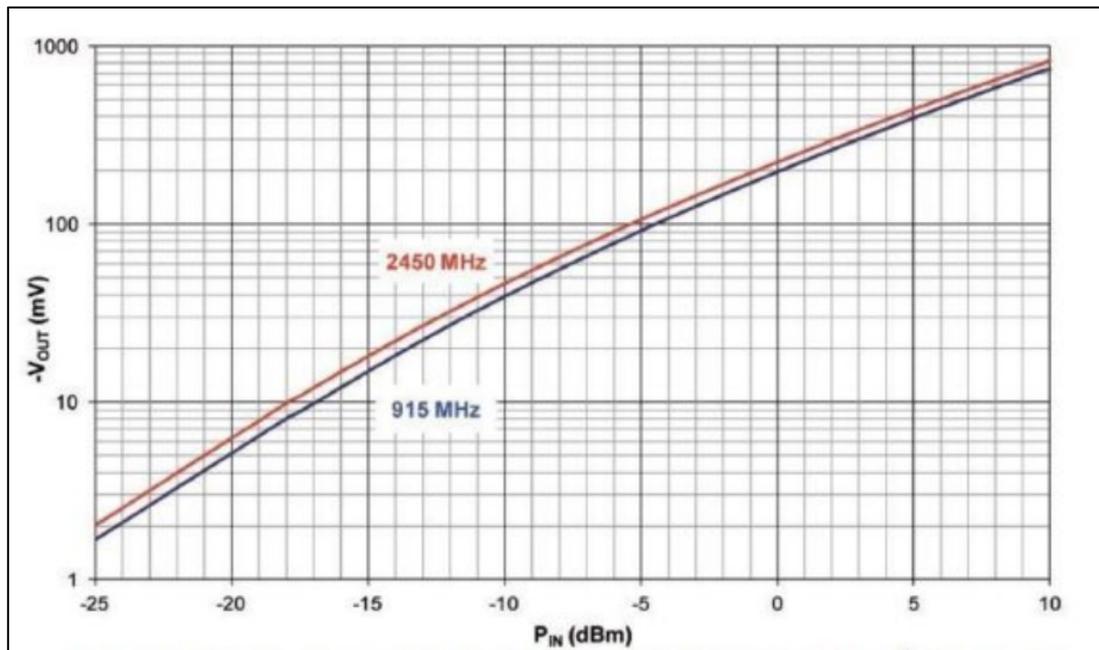


Abbildung 29: Schottky-Diode MM1001B-111AB MUEGGE; das Diagramm gilt für eine Temperatur von 25 °C, -800 mV bei 2,45 GHz entsprechen 10 dBm dies sind 10 mW

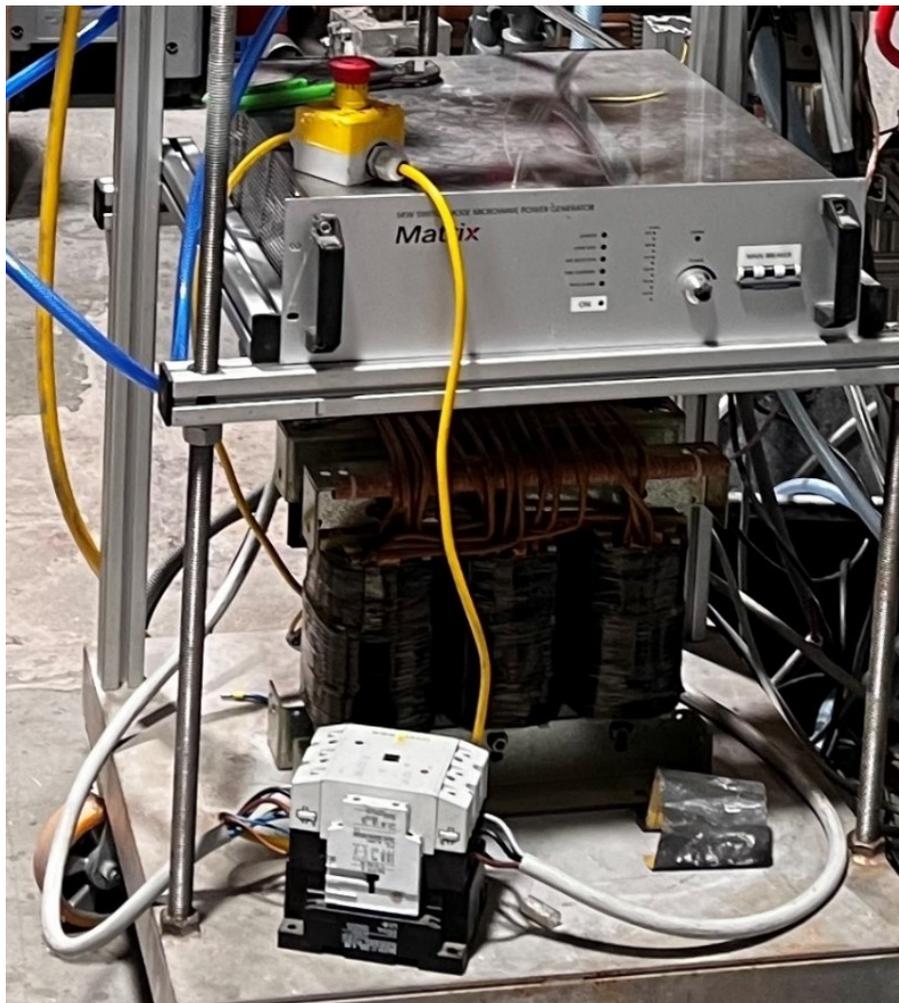


Abbildung 30: Zwischengeschalteter (zwischen Trafo und Netzteil) Leistungsschalter und Notaus

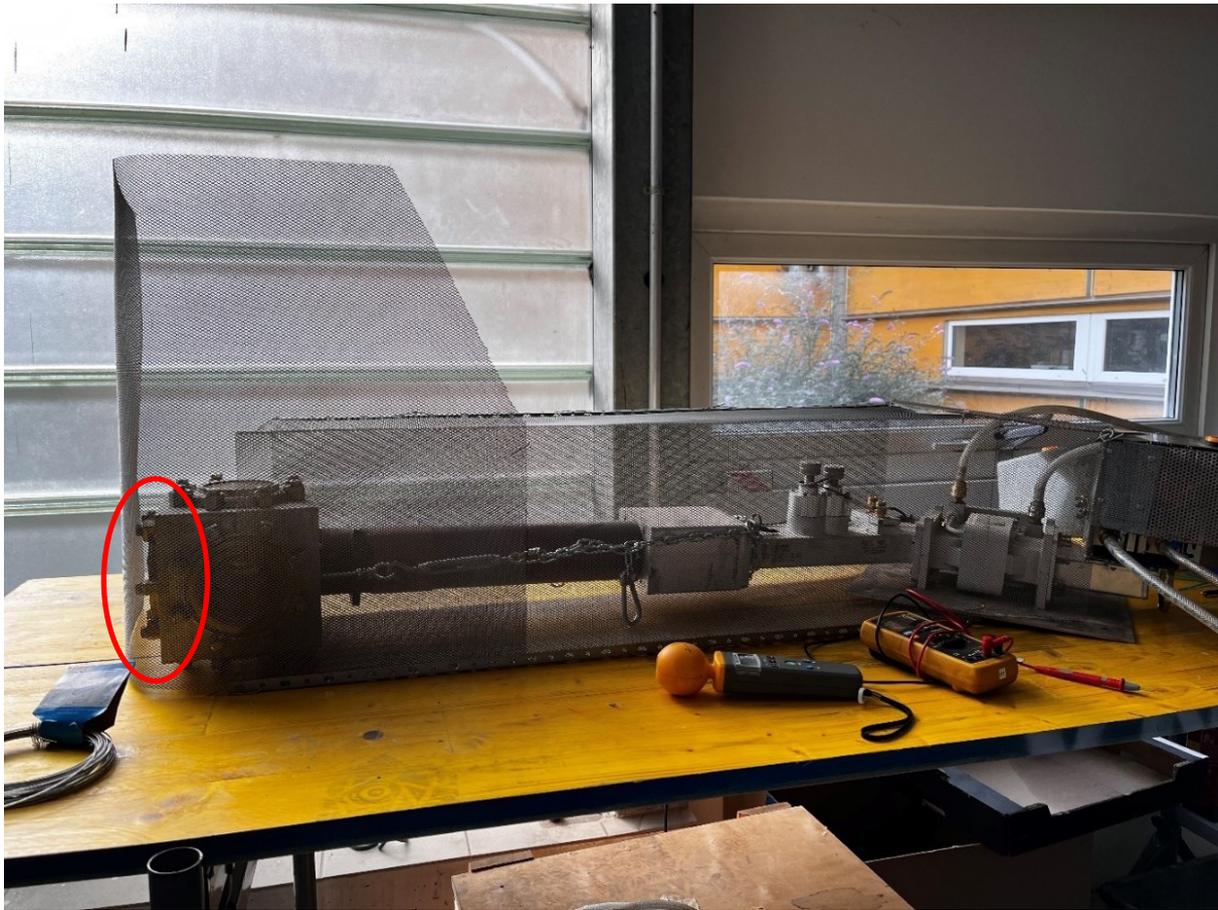


Abbildung 31: Faradaykäfig für die Überprüfung der Funktionstauglichkeit; Ende geöffnet, mit rotem Kreis markiert

4.2 TIA-Plasma

Für die Zündung des TIA-Plasmas ist es notwendig die Stifte im Tuner und die Höhe der Kupferspitze zu adjustieren (diese Komponenten befinden sich horizontal gesehen auf derselben Ebene relativ zur Mikrowellenstrahlung). Im Tuner befinden sich Metallstäbe deren Eindringtiefe variierbar ist. Der Tuner reflektiert die aus der Brennkammer zurückkommende Strahlung wieder in die Brennkammer (Leins 2010). Dadurch wird es möglich die Strahlung auf das Innenrohr zu fokussieren. Die Veränderung des Über-/Unterhangs der Kupferspitze führt zu einer Entladung der fokussierten Strahlung im Argon. Zur Einstellung der eben genannten Höhen/Tiefen wird die reflektierte Leistung beobachtet. Der anfängliche Wert von ca. $-4,4\text{ V}$ wird etappenweise verringert. Die Position des Tuner-Stiftes wird so lange verändert, bis sich der Messwert der abgeführten Leistung an einem lokalen Minimum befindet. Anschließend daran wird dies beim zweiten Tuner-Stift und danach mit der Kupferspitze wiederholt. Nahe dem Minimum ist ein Knistern hörbar und es lässt sich Funkenbildung im Spalt zwischen dem inneren Aluminiumzylinder und der Kupferspitze beobachten (an der Diode wird ein Wert von ca. $-3,7\text{ V}$ gemessen). Diese beiden Komponenten benötigen am oberen Ende (nahe der Spitze) eine leitende Verbindung, um die Strahlung erst an der Kupferspitze zu entladen. Beim ersten Versuch bleibt die Zündung erfolglos. Da die Spielpassung bei der Anfertigung zu groß ausfällt, wird der Spalt mittels

Aluminiumfolie minimiert (ersichtlich in Abbildung 32). Nach erneutem Versuch geht das anfängliche Knistern in ein Brummen über und eine Plasmaflamme kann gezündet werden, wie es in Abbildung 33 veranschaulicht wird. Sobald die Plasmaflamme entsteht, fällt der Wert der zurückreflektierten Strahlung stark auf ca. $-1,16\text{ V}$ ab. Nach der Zündung des Plasmas wird ein leichter Ozongeruch wahrgenommen.

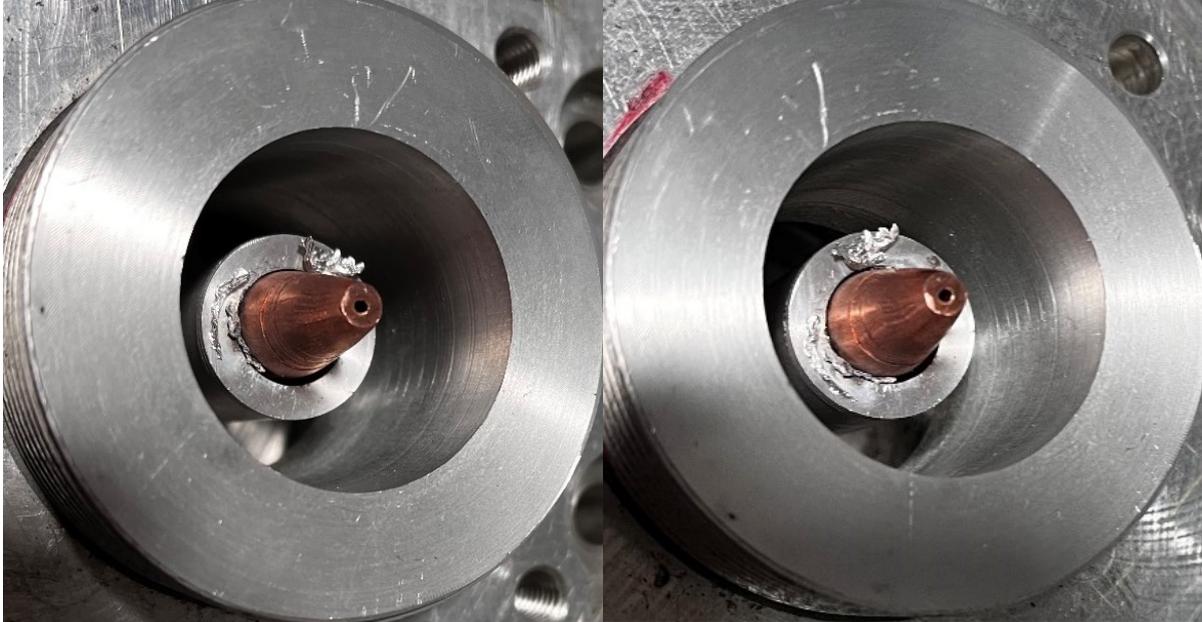


Abbildung 32: Schaffung einer leitenden Verbindung zwischen Aluminium und Kupfer nahe der Plasmaspitze mittels Aluminiumfolie

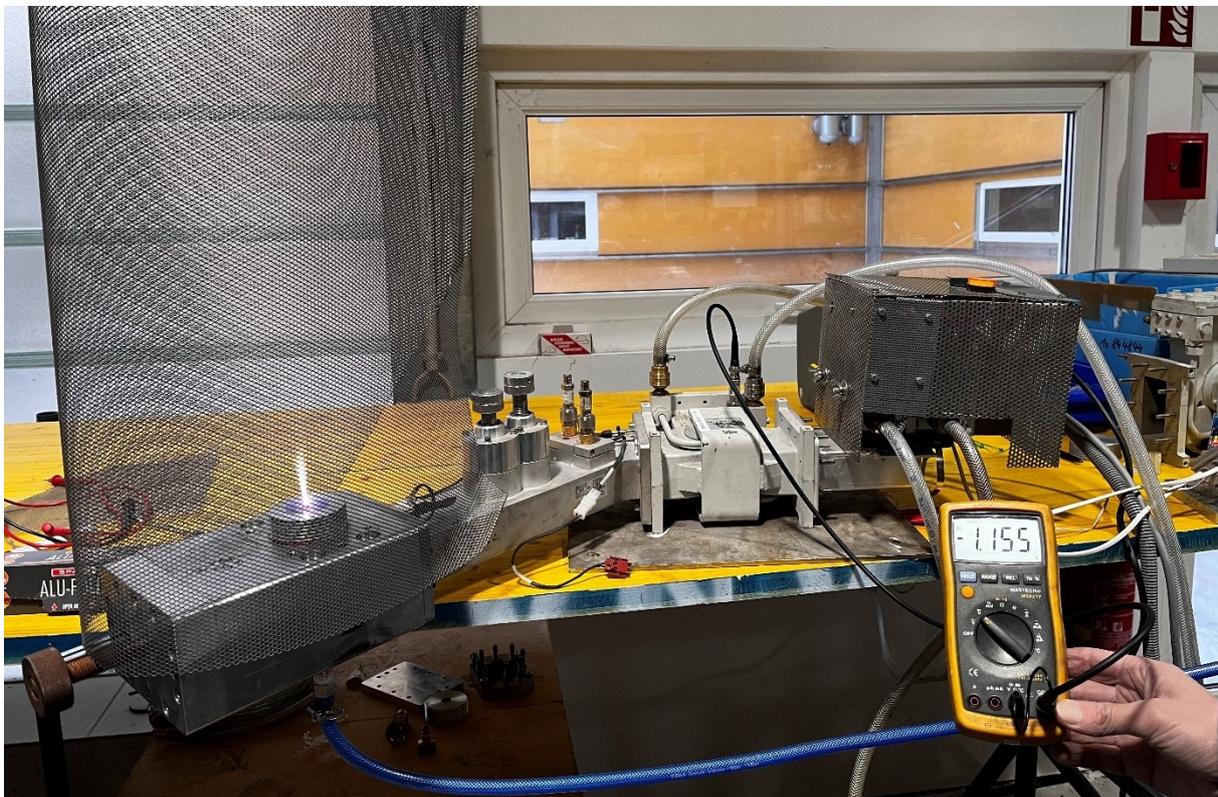


Abbildung 33: gezündete TIA-Plasmaflamme

4.3 APS-Plasma

Die APS-Brennkammer wird in gleicher Weise wie die TIA-Brennkammer gezündet. Nach dem Einstellen der Tuner-Stifte und des Koaxialresonators (die optimale Eindringtiefe des Resonators in die Brennkammer beträgt ca. 8 mm (Leins 2010)) sinkt der Wert der gemessenen reflektierten Leistung auf -63 mW (es werden ca. -10 mV an der Diode gemessen was -18 dBm entspricht). Die APS-Plasmaflamme ist in der Länge stärker ausgeprägt als die TIA-Plasmaflamme. Abbildung 34 zeigt die gezündete APS-Brennkammer.



Abbildung 34: gezündete APS-Plasmaflamme

4.4 Charakterisierung des Pulverfeedstroms

Folgende Größen werden in diesem Kapitel ermittelt:

- die Probenaufgabegeschwindigkeit in Abhängigkeit zur Leistung der Aufgabeapparatur
- die Verlustmenge der Proben bedingt durch die Aufgabe
- die Wiederfindungsrate
- die Korngrößenverteilung der Proben.

4.4.1 Massenstrom

Die Probe wird Mittels RODOS und Druckluft aufgegeben. Je nachdem ob es sich um Aluminiumoxid oder um Zirkonoxid handelt, weichen die Massenströme voneinander ab. Dies ist in Tabelle 6 ersichtlich. Bildlich dargestellt wird dieser Zusammenhang in Abbildung 35 und Abbildung 36. In Abbildung 36 wird der Massenstrom der Aluminiumoxidprobe über einen größeren Leistungsbereich dargestellt, als der Massenstrom der Zirkonoxidprobe. Dies liegt daran, dass dieser in Abhängigkeit zur RODOS-Rüttelleistung weniger stark variiert. Grund dafür ist, dass der höhere Wert der Dichte (Tabelle 5) und der höhere Wert der Korngröße (Tabelle 10) der Zirkonoxidprobe.

Tabelle 6: Massenstrom Probe in Abhängigkeit zur RODOS-Rüttelleistung

Leistung RODOS [%]	$m\text{Al}_2\text{O}_3 \left[\frac{\text{g}}{\text{min}} \right]$	$m\text{ZrO}_2 \left[\frac{\text{g}}{\text{min}} \right]$
7	1,0	-
10	1,3	0,7
12	-	1,2
13	1,5	1,5
14	-	2,0
16	1,8	2,8
19	2,6	4,6
22	3,4	-
25	4,6	-
30	9,5	-
40	19	-

Die Zirkonoxidprobe bildet einen schmalen Schüttkegel (in Fließrichtung schmaler werdend) und es bilden sich Wellen radial zur Fließrichtung aus (die Höhe des Sandes variiert je nach Ort innerhalb des Kegels, vor allem bei niedriger RODOS-Rüttelleistung ist dies gut sichtbar). Der Schüttkegel der Aluminiumoxidprobe ist breiter ausgedehnt und es lassen sich keine Wellen erkennen (die Höhe des Sandes ist gleichbleibend über die gesamte Kegelform hinweg).

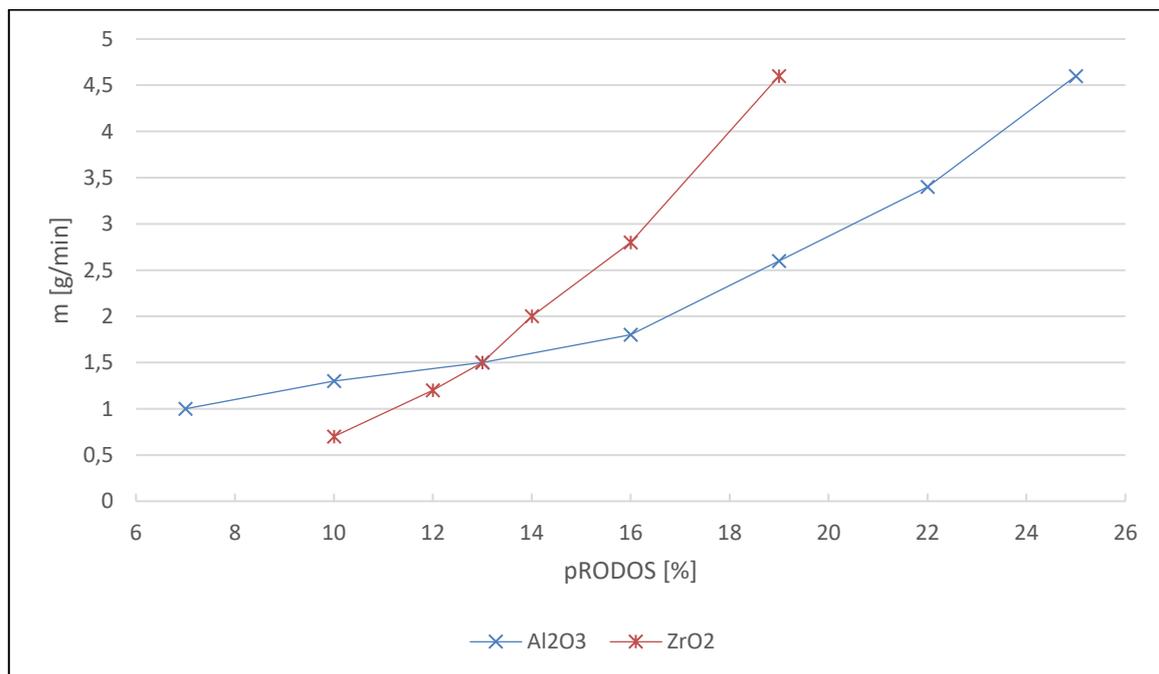


Abbildung 35: Massenstrom Probe in Abhängigkeit zur RODOS-Rüttelleistung

Aus Abbildung 35 ist erkennbar, dass der Massenstrom der Aluminiumoxidprobe weniger stark von der Rüttelleistung des RODOS (VIBRI) beeinflusst wird als der Massenstrom der Zirkonoxidprobe. Ebenfalls ist ersichtlich, dass der Wert des Massenstromes der Aluminiumoxidprobe, bei geringerer Leistung, höher ist als der Wert des Massenstromes der Zirkonoxidprobe. Ab einem Massenstrom von 1,5 g/min übersteigt der Wert des

Massenstromes der Zirkonoxidprobe den Wert des Massenstromes der Aluminiumoxidprobe. Da die Proben durch Vibration gefördert werden, wird dieser Transport stark von der Dichte und der Korngröße des Probenmaterials beeinflusst.

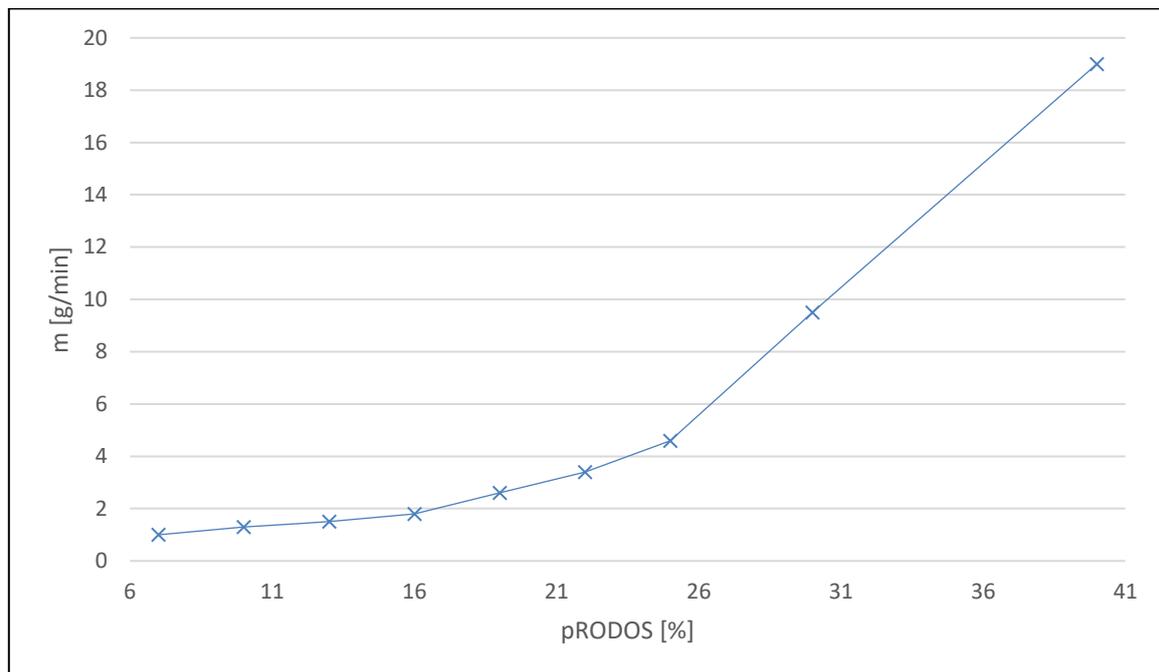


Abbildung 36: Massenstrom Al_2O_3 in Abhängigkeit zur RODOS-Rüttelleistung

Abbildung 36 zeigt den Zusammenhang zwischen der RODOS-Rüttelleistung (Vibri-Leistung) und dem Massenstrom der Aluminiumoxidprobe. Bei niedrigen Leistungen steigt der Massenstrom nicht stark an (Anzeichen eines linearen Zusammenhangs bis 16 % Leistung). Ab 16 % ist ein erster Anstieg des Linearen Faktors erkennbar, welcher sich dann ab 26 % ein zweites Mal erhöht. Da für die Versuche ein Massenstrom von 20 g/min mehr als ausreicht, wurde der Bereich über 41 % Leistung nicht weiter untersucht.

4.4.2 Wiederfindungsrate

Die verwendeten Behälter haben ein anderes Gewinde als der verwendete Zyklon (Behälter: Nalgene PP 1000 mL Weithalsflasche). Beim Behälterwechsel wird bei den Aluminiumoxidproben am Gewinde ein Probenverlust festgestellt. Die Korngrößenverteilung wird von den Reinproben (A1, B1 und B2) und dem zweiten Durchlauf der Proben Al2, Al3 und Zr2 (der Probenrückstand im Zyklon wurde ein zweites Mal aufgegeben und aufgefangen) gemessen. Es werden Mikroskopbilder der Reinproben, der Proben Al1 und Zr1 bzw. des zweiten Durchlaufes der Proben Al3 und Zr3 angefertigt (Abbildung 39 und Abbildung 42). Der Zyklon, der Auffangtrichter und die Schläuche des Aufgabe- und Wiedergewinnungssystems werden gereinigt. Mit diesem Aufbau wird die Proben A1, B1 und B2 angefertigt. Die Proben A1, B1 und B2 sind sehr dunkel (da sich in den Schläuchen trotz Reinigung dennoch viel Rückstand aus vorherigen Versuchen befindet). Der Schlauch wird ersetzt (dieser ist nun rückstandsfrei) und die restlichen Proben wird durch diese Schläuche transportiert. Die Ergebnisse dieser Versuche sind in Tabelle 7, Tabelle 8 und Tabelle 9 ersichtlich.

Tabelle 7: Wiederfindungsrate Aluminiumoxid nach RODOS-Durchlauf

Bezeichnung	Behältermasse [g]	Einwaage [g]	Gesamtmasse [g]	Differenz [g]	Wiederfindungsrate [%]
A1	88,8	2,5	91,1	2,3	92
Al1	89,7	2,5	91,7	2,0	80
Al2	89,3	5,0	93,9	4,6	92
Al3	89,3	5,0	94,1	4,8	96

Tabelle 7 zeigt tendenziell einen steigenden Prozentsatz der Wiederfindung. Da ab Probe Al1 ein neuer Schlauch zum Einsatz kommt, deutet dies auf Ablagerungen im Schlauch hin. Dieser Schlauch ist noch unbenutzt und es muss zuerst eine „Sättigung“ an Ablagerungen erreichen.

Tabelle 8: Wiederfindungsrate Zirkonoxid nach RODOS-Durchlauf

Bezeichnung	Behältermasse [g]	Einwaage [g]	Gesamtmasse [g]	Differenz [g]	Wiederfindungsrate [%]
B1	-	2,5	-	2,2	88
B2	89,4	2,1	91,2	1,8	86
Zr1	89,4	2,5	91,5	2,1	84
Zr2	89,4	2,5	91,8	2,4	96
Zr3	89,3	5,0	94,3	5,0	100

Tabelle 8 deutet ebenfalls auf die Ablagerungen im Schlauch hin (beide Proben werden immer abwechselnd aufgegeben). Auffällig ist, dass bei der Zirkonoxidprobe zum Schluss kein Probenverlust mehr beobachtet wird. Da die Zirkonoxidprobe grobkörniger ist als die Aluminiumoxidprobe, wird nach der „Schlauchsättigung“ alles im Zyklon aufgefangen. Die Aluminiumoxidprobe hat einen höheren Feinanteil (siehe 4.4.3 Korngrößenverteilung), welcher aus dem Zyklon austritt. Der Feinanteil wird nicht aufgefangen, weshalb diese Annahme nicht bestätigt werden kann.

Tabelle 9: Wiederfindungsrate Probe nach einem zweiten RODOS-Durchlauf

Verwendete Probe	Behältermasse [g]	Einwaage [g]	Gesamtmasse [g]	Differenz [g]	Wiederfindungsrate [%]
Al2	88,9	1	89,8	0,9	90
Al3	89,6	4,4	93,7	4,1	93
Zr2	89,8	1	91,2	1,4	140
Zr3	89,3	4,9	94,2	4,9	100

Beim ersten RODOS-Durchlauf Al3 bleiben noch 0,3 g an der Wand des Behälters haften. Beim zweiten RODOS-Durchlauf Al3 (derselbe, ungereinigte Behälter mit 0,3 g Material vom Vorversuch) bleiben noch 0,1 g an der Wand des Behälters haften. Dies weist auf eine große statische Haftung der Aluminiumoxidprobe am Kunststoffbehälter hin. Dieser Anteil der Probe steht für die Korngrößenanalyse nicht zur Verfügung. Am Kunststoffschlauch und am Übergang zwischen Kunststoffschlauch und Metallkomponente des Auffangsystems wird ebenfalls Probenrückstand festgestellt. Auf diese Punkte wird in 4.4.3 Korngrößenverteilung noch genauer eingegangen. In Tabelle 9 ist erkennbar, dass die Aluminiumoxidprobe eine

ähnliche Ausbeute wie in den vorangegangenen Versuchen besitzt. Die Zirkonoxidprobe wird vollständig aufgefangen. Der zweite RODOS-Durchlauf der Probe Zr₂ hat eine Wiederfindungsrate von über 100 %. Dies kann einerseits an der geringen Probenmenge, andererseits an einer Kontamination mit Aluminiumoxidprobe (bedingt durch die Ablagerungen im Schlauch und am Gewinde) liegen.

4.4.3 Korngrößenverteilung

Die Analyse der Korngrößenverteilung wird mit dem HELOS durchgeführt. Abbildung 37 zeigt die Korngrößenverteilung der Reinproben Aluminiumoxid und Zirkonoxid. Zu erkennen ist, dass die Korngrößenverteilung der Zirkonoxidprobe (Probenbezeichnung ZrO₂ rein) in der logarithmischen Darstellung einer Normalverteilung ähnelt (mit einer leichten Asymmetrie zugunsten des Feinanteils). Die Korngrößenverteilung der Aluminiumoxidprobe (Probenbezeichnung Al₂O₃ rein) hat einen höheren Feinanteil als die Korngrößenverteilung der Zirkonoxidprobe. In der logarithmischen Darstellung sind zwei Peaks erkennbar. Der Peak des Feinanteils ist flacher und breiter gefächert. Beim Vergleich von ZrO₂ rein mit Al₂O₃ rein ist deutlich erkennbar, dass ZrO₂ rein im Durchschnitt gröber ist als Al₂O₃ rein. Die größten Partikel von Al₂O₃ rein sind zwar mit der Korngröße von ZrO₂ rein vergleichbar, jedoch ist Al₂O₃ rein feiner als ZrO₂ rein. Zusätzlich besitzt Al₂O₃ rein einen Feinanteil in einem Korngrößenbereich, welcher sich außerhalb der Korngrößenverteilung von ZrO₂ rein befindet.

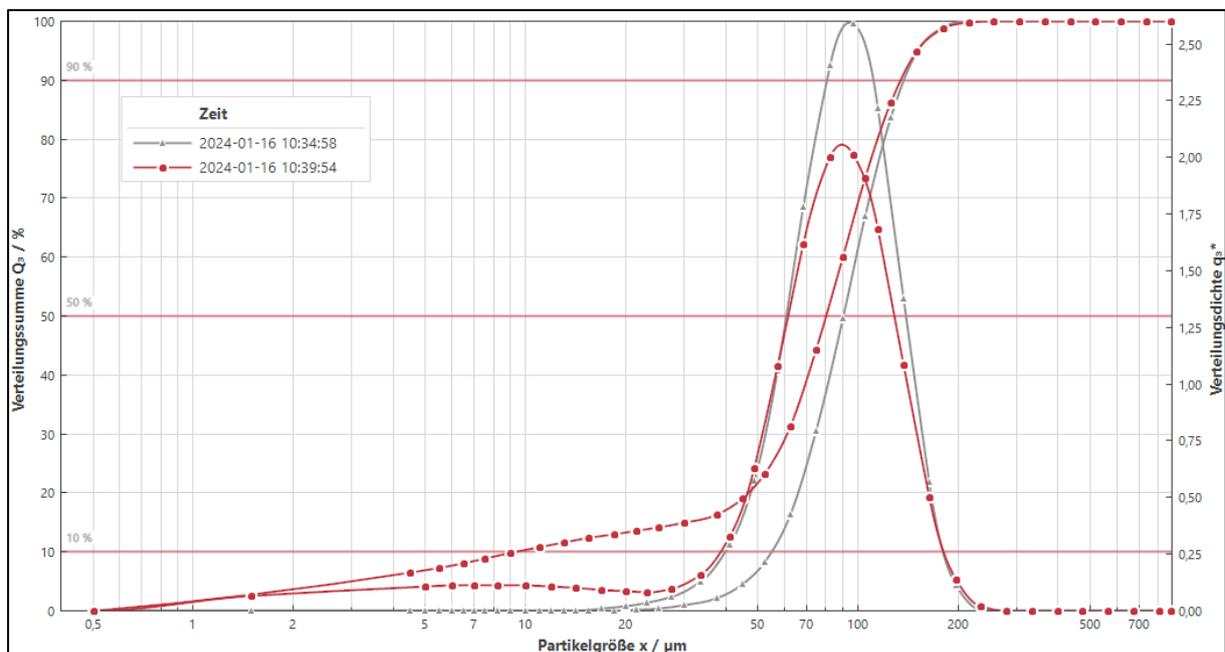


Abbildung 37: Vergleich Korngrößenverteilung der Reinproben Aluminiumoxid (2024-01-16 10:39:54) und der Reinprobe Zirkonoxid (2024-01-16 10:34:58)

In Abbildung 38 ist die Korngrößenverteilung der Aluminiumoxid-Reinprobe dargestellt. Die Darstellung vergleicht die Korngrößenverteilung der Probe, wenn diese direkt aus dem Probenbehälter entnommen wird (Al₂O₃ rein) mit der Korngrößenverteilung nach dem Durchlaufen der Aufgabe- und Auffangvorrichtung (RODOS und Zyklon, Probenbezeichnung Al₂O₃ rein RODOS₁). Erkennbar ist, dass der Feinanteil prozentual gestiegen ist. In Abbildung

39 wir beobachtet, dass Agglomerate in der Aluminiumoxidprobe durch die Aufgabe zerstört werden. Dies senkt den Grobanteil und erhöht den Feinanteil. Wie bereits beobachtet, haftet der Feinanteil sehr stark statisch an den Kunststoffkomponenten des Versuchsaufbaus. Dies führt zum Masseverlust an Probe.

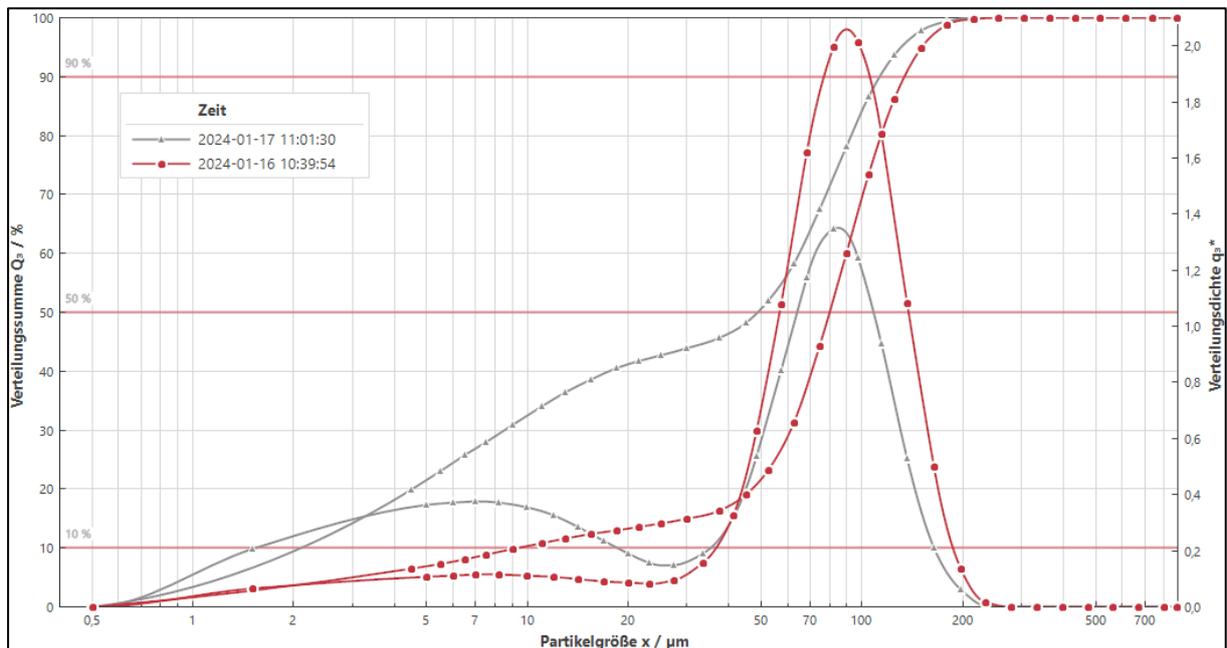


Abbildung 38: Vergleich Aluminiumoxid Korngrößenverteilung Reinprobe (2024-01-16 10:39:54) und Reinprobe nach RODOS-Durchlauf (2024-01-17 11:01:30)

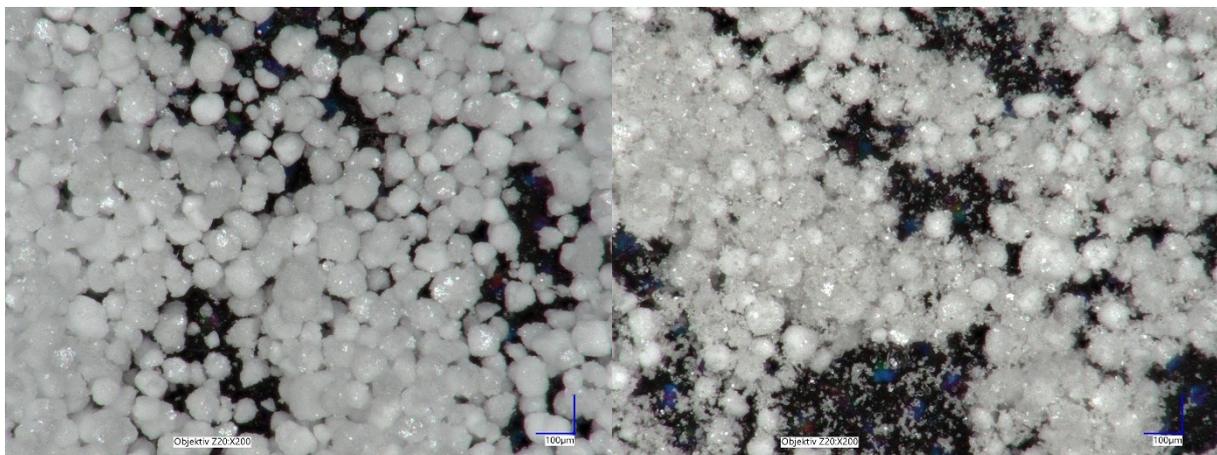


Abbildung 39: Aluminiumoxid-Reinprobe aus dem Probengefäß (links), nach zwei RODOS-Durchläufen (rechts)

Es wird erneut eine Aluminiumoxid-Reinprobe nach einem Durchlauf durch die RODOS-Apparatur analysiert. Das Ergebnis dieser Analyse ist in Abbildung 40 (Probenbezeichnung Al_2O_3 rein RODOS₂) ersichtlich. Bei Al_2O_3 rein RODOS₂ wird wieder ein höherer Grobanteil und ein geringerer Feinanteil gemessen. Da größere Partikel schwerer sind, werden sie nicht in Schwebelage gehalten und werden eher an der Schlauchwand transportiert. Die Verbindungsstücke der Schläuche weisen einen Spalt auf. Durch die Trägheit der größeren Partikel und die generelle statische Haftung der Aluminiumoxidprobe lässt sich

annehmen, dass sich ein Teil des Grobanteils der Probe der ersten Analyse noch im Schlauch befindet. Bedingt durch diese „Sättigung“ bleibt dann bei der anschließenden Analyse weniger Probe am Schlauch haften, was zu einem höheren Grobanteil führt. Der Feinanteil ist trotzdem höher und der Grobanteil trotzdem geringer als bei der Korngrößenanalyse von Al_2O_3 rein (ersichtlich in Tabelle 10).

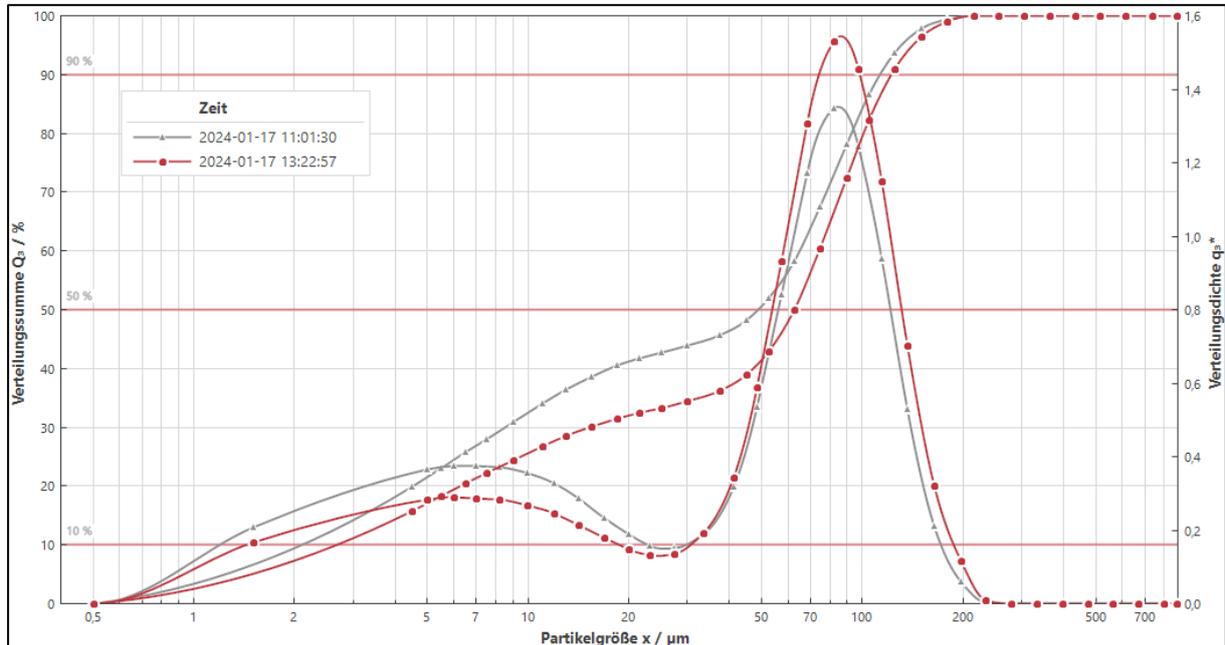


Abbildung 40: Vergleich Korngrößenverteilung Aluminiumoxid Reinprobe nach RODOS-Durchlauf erster Versuch (2024-01-17 11:01:30) und zweiter Versuch (2024-01-17 13:22:57)

Bei der Korngrößenanalyse der Zirkonoxid-Reinprobe nach einem RODOS-Durchlauf (Probenbezeichnung ZrO_2 rein RODOS) wird nahezu keine Veränderung beobachtet. Wie in Abbildung 41 und Abbildung 42 erkennbar, wird die Zirkonoxidprobe vom Transport und von der Dispergierung mittels RODOS-Apparatur kaum beeinflusst.

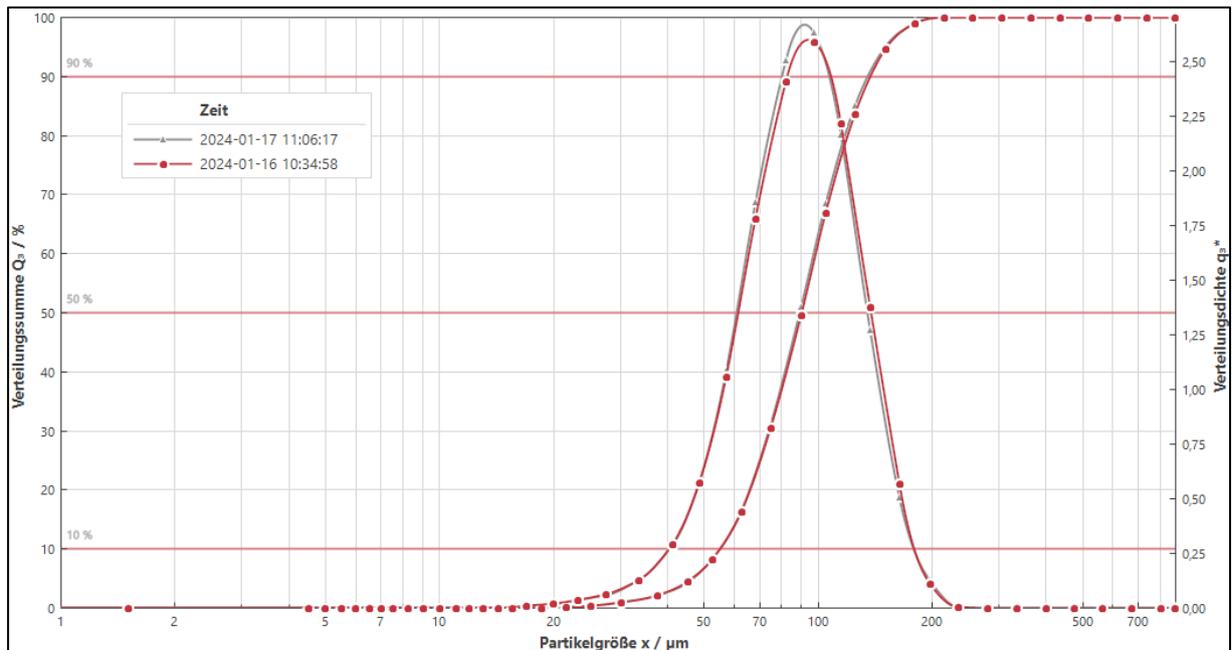


Abbildung 41: Vergleich Zirkonoxid Korngrößenverteilung Reinprobe (2024-01-16 10:34:58) und Reinprobe nach RODOS-Durchlauf (2024-01-17 11:06:17)

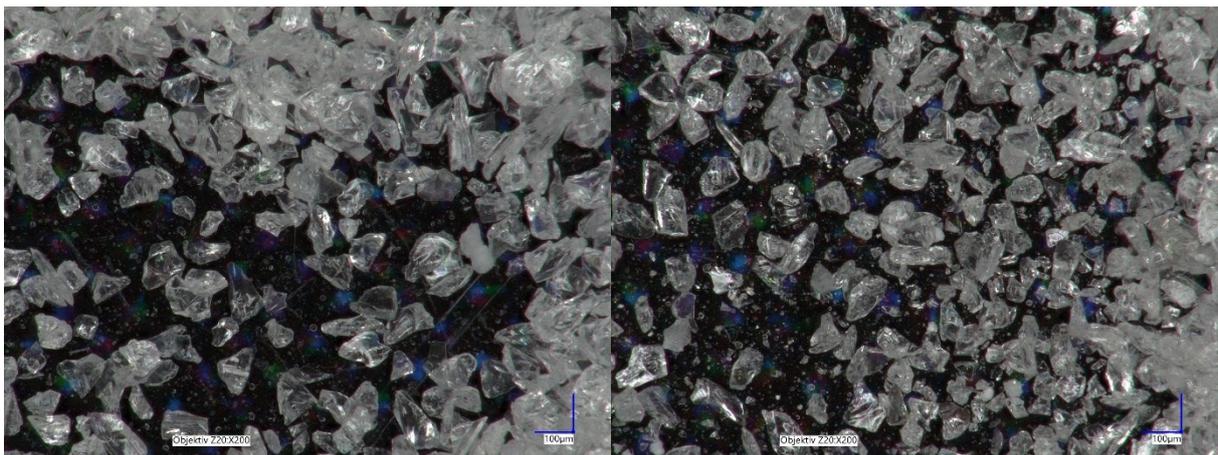


Abbildung 42: Zirkonoxid-Reinprobe aus dem Probengefäß (links), nach zwei RODOS-Durchläufen (rechts)

In Tabelle 10 sind die Ergebnisse der Korngrößenanalyse der Reinproben zusammengefasst. Erkennbar ist, dass sich die Zirkonoxidprobe durch die Aufgabe und das Auffangen kaum ändert, die Aluminiumoxidprobe jedoch deutlich. Im Durchschnitt besitzt die Zirkonoxidprobe einen höheren Korngrößenwert als die Aluminiumoxidprobe. Das RODOS-System verändert die Aluminiumoxidprobe dahingehend, dass die Agglomerate zerstört werden und die Probe im Durchschnitt einen geringeren Korngrößenwert aufweist.

Tabelle 10: Korngrößenanalyse Aluminiumoxid- und Zirkonoxid, Reinprobe direkt aus dem Probengefäß und Reinprobe nach dem Durchlaufen des Aufgabe- und Auffangsystems

Bezeichnung	Sauterdurchmesser D ₃₂ [μm]	Medianwert D ₅₀ [μm]	Modalwert D _{max}		Äquivalent- durchmesser [μm]
			Peak fein [μm]	Peak grob [μm]	
ZrO ₂ rein	81,80	90,39	-	~91	93,97
ZrO ₂ rein RODOS	81,25	89,26	-	~90	92,99
Al ₂ O ₃ rein	22,25	80,49	~7	~90	79,99
Al ₂ O ₃ rein RODOS ₁	8,78	48,59	~7	~81	51,32
Al ₂ O ₃ rein RODOS ₂	10,81	62,51	~6	~81	51,32

4.5 Schmelzversuche

Da die Probe durch das RODOS an offener Atmosphäre aufgegeben wird, tritt am Koaxialresonator kein reines Argongas in die Brennkammer ein, sondern ein Argon-Umgebungsluft-Gemisch. Dieses kann die Brennkammerkonfiguration laut Abbildung 25 (mit dem eingebauten Koppellement- $\lambda/4$) nicht zünden. Beim Zündversuch wird nach dem Adjustieren ein lautes Knistern vernommen und ein hellgrünes bis hellblaues Flackern geht damit einher. Es werden also Funken erzeugt, jedoch bildete sich keine Plasmaflamme. Dies führt zu einem starken Verschleiß der Koaxialspitze, welcher in Abbildung 43 ersichtlich ist. Nach dem Entfernen des Koppellements- $\lambda/4$ ist die Plasmazündung erfolgreich. Ein Koppellement erhöht die Qualität des Resonators (höheres elektrisches Feld und kleinere Bandbreite für die Resonanz). Durch ein Koppellement wird also der Toleranzbereich für die Resonanz verringert, was eine Zündung deutlich erschwert. Des Weiteren kann es durch ein erhöhtes elektrisches Feld im Spalt zu einer frühzeitigen Entladung im Koppellement kommen (auch im Tuner möglich, da dieser ebenfalls wie ein kapazitives Koppellement wirkt). Durch solche Entladungen steht die Energie dann nicht mehr für die Brennkammer zur Verfügung (Leins 2010). Da beim erfolglosen Zündversuch sowohl im Koppellement- $\lambda/4$ als auch im Tuner ein Knistern zu hören ist (diese Bauteile erwärmen sich zusätzlich auch stark), ist dies vermutlich der Grund für die misslungene Zündung.



Abbildung 43: Vergleich Koaxialresonator nach der Fertigung (links) und nach dem missglückten Zündversuch (rechts)

4.5.1 Plasmaflamme

Nach dem Einleiten der Probe in die Brennkammer wird ein „Aufleuchten“ der Plasmaflamme beobachtet. Mit dieser Lichtemission wird die Proben­temperatur abgeschätzt. Den Zusammenhang zwischen der Temperatur und der Wellenlänge eines schwarzen Körpers bildet das Wien'sche Verschiebungsgesetz. Demzufolge existiert eine reziproke Beziehung der Temperatur zur abgestrahlten maximalen Wellenlänge eines schwarzen Strahlers (je höher die Temperatur, desto kürzer die Wellenlänge des Maximums). Dies ist in Formel (1) dargestellt (Gmelch und Reineke 2019).

$$\lambda_{max} = \frac{2,898 * 10^6 [nm * K]}{T} \quad (1)$$

Durch das Umformen wird die Temperatur explizit angegeben. Durch Einsetzen der Wellenlänge in Formel (2) wird eine ungefähre Plasma- und Proben­temperatur bestimmt. Die Wellenlänge wird aus den Farbcodes der Pixel in Abbildung 44, Abbildung 45 und Abbildung 46 herausgelesen. Beim Beispiel aus Abbildung 44, entspricht der Farbcode des Aluminiumoxidversuches an der Position B einer Wellenlänge von 590 nm (HTML-Notation: c47b53). Dies ergibt eine Temperatur von 4912 K.

$$T = \frac{2,898 * 10^6 [nm * K]}{\lambda} \quad (2)$$

$$T_{Abb40,AlO2,A} = \frac{2,898 * 10^6 [nm * K]}{590 [nm]} = 4912 [K]$$

Tabelle 11: Farbcode und dementsprechende Wellenlänge der Positionen A und B aus Abbildung 44, Abbildung 45 und Abbildung 46 vom Aluminiumoxid- und Zirkonoxidversuch mit Temperatur berechnet laut Formel (2)

Quelle	Probe	Position	Farbwert	Wellenlänge [nm]	Temperatur [K]
Abbildung 44	Al ₂ O ₃	A	ffffff	570*	5084
		B	c47b53	590	4912
	ZrO ₂	A	fffffd	570	5084
		B	e75e00	596	4862
Abbildung 45	Al ₂ O ₃	A	fffffd	570	5084
		B	fdde00	574	5049
	ZrO ₂	A	fefd00	570	5084
		B	fc7f00	590	4912
Abbildung 46	Al ₂ O ₃	A	ffffff	570	5084
		B	da9f5e	583	4971
	ZrO ₂	A	fffffe	570	5084
		B	d38b5b	588	4929

*Für diesen Wert ist keine Wellenlänge angegeben. Annahme: selber Wert wie bei fffffd

Die Wellenlänge der Farben entsprechend HTML-Hexadezimal-Notation werden der Webseite encycolorpedia.de entnommen. In Tabelle 11 lässt sich erkennen, dass die Plasmatemperatur mit aufgebener Zirkonoxidprobe stärker fällt als die Temperatur unter Aufgabe der Aluminiumoxidprobe (die Positionen A und B befinden sich auf ähnlicher Höhe). Dies lässt sich bereits aus Abbildung 44, Abbildung 45 und Abbildung 46 vermuten (die Flamme ist mit Zirkonoxid nicht so hell wie mit Aluminiumoxid und weist eine stärkere Rotfärbung auf). Die Produktausbeute nach Schmelzversuch 1 ist in Tabelle 12 ersichtlich. Nach diesem Versuch wird bei der Auffangvorrichtung Produkt am Boden gefunden und während dem Versuch wird beobachtet, dass das Produkt die Brennkammer im Tangentialstrom entlang des Quarzrohres verlässt und nicht zentral.

Tabelle 12: Ausbeute an Produkt nach Schmelzversuch 1

Probe	Masse Behälter [g]	Masse Probe vor Schmelzversuch [g]	Masse Behälter und Probe nach Schmelzversuch [g]	Masse Probe nach Schmelzversuch [g]	Ausbeute [%]
ZrO ₂	89,1	13,5	96,3	7,2	53
Al ₂ O ₃	89,7	12,8	100,3	10,6	83

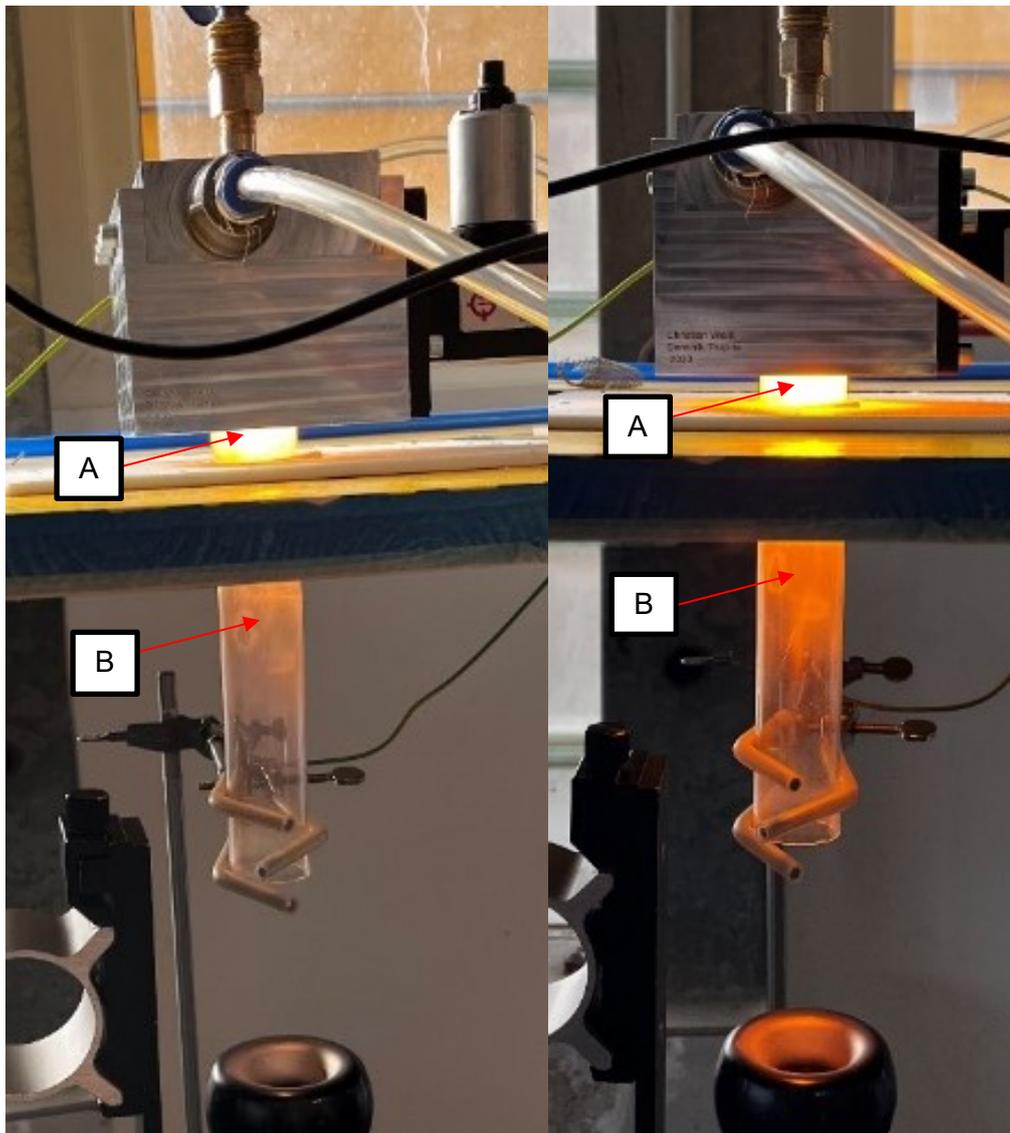


Abbildung 44: Schmelzversuch 1 APS-Plasma mit Aluminiumoxidpulver (links) und Zirkonoxidpulver (rechts) Eintrag Seitenansicht. Position A bzw. Position B gewählt für die Abschätzung der Temperatur.

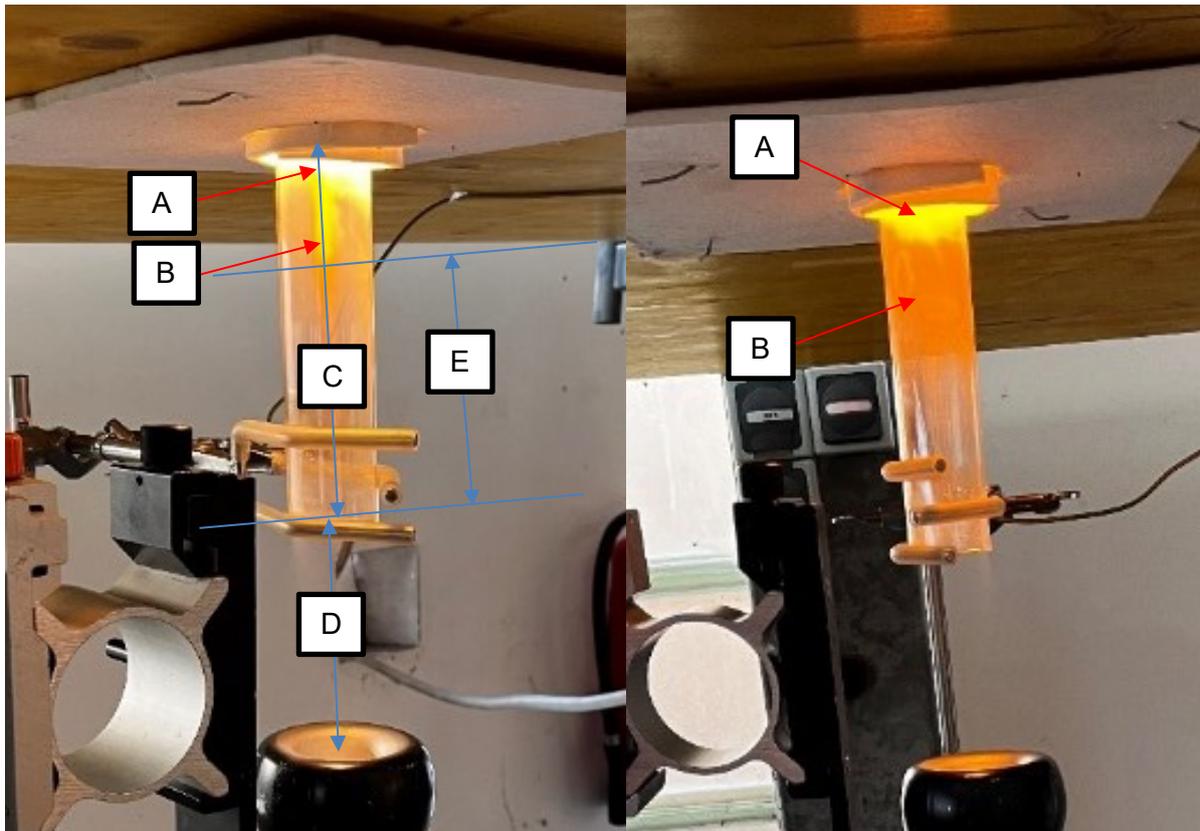


Abbildung 45: Schmelzversuch 1 APS-Plasma mit Aluminiumoxidpulver (links) und Zirkonoxidpulver (rechts) Eintrag Seitenansicht von schräg unten. A und B: Position A bzw. Position B für die Abschätzung der Temperatur. C: Länge des Quarzrohres bis zum Tisch (170 mm). D: Entfernung zwischen Quarzrohr und Probenabsaugung (105 mm). E: Länge vom Plasma bis zum Quarzrohraustritt (113 mm).

Die Temperatur wird bei Schmelzversuch 1 und Schmelzversuch 2 mit einem Thermoelement (Typ K) gemessen und weist bei Schmelzversuch 1 am Austritt der Quarzröhre einen Wert von ca. 300 °C auf. Die Quarzröhre hat eine Länge von 300 mm. Das Ende der Röhre ist somit ca. 305 mm von der Messingspitze entfernt. Am Trichtereingang sinkt der Temperaturwert auf ca. 100 °C. Dieser ist ca. 105 mm von der Quarzröhre entfernt und somit ca. 410 mm von der Messingspitze.

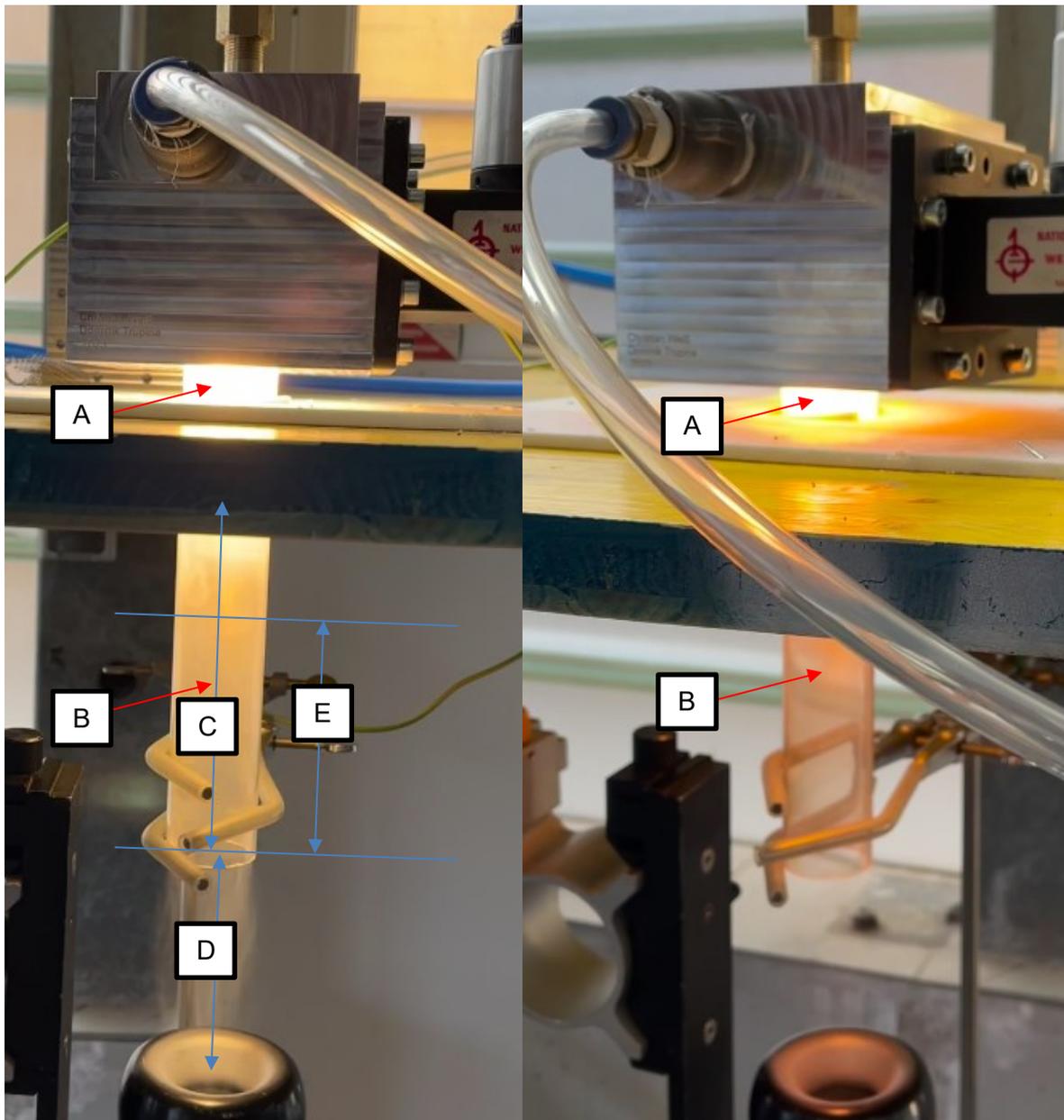


Abbildung 46: Schmelzversuch 2 APS-Plasma mit Aluminiumoxidpulver (links) und Zirkonoxidpulver (rechts) Eintrag Seitenansicht von schräg oben. A und B: Position A bzw. Position B für die Abschätzung der Temperatur. C: Länge des Quarzrohres bis zum Tisch (170 mm). D: Entfernung zwischen Quarzrohr und Probenabsaugung (105 mm). E: Länge vom Plasma bis zum Quarzrohraustritt (113 mm).

Bei Schmelzversuch 2 wird beim Auffangtrichter eine Temperatur von mindestens $>300\text{ }^{\circ}\text{C}$ gemessen (385 mm von der Messingspitze entfernt). Beim Aluminiumoxidversuch werden außerdem glühende Punkte am Quarzrohraustritt beobachtet. Nach den Versuchen wird kein Produkt neben der Auffangvorrichtung gefunden. Der Druckluft- und Argon-Strom sind besser aufeinander abgestimmt als die Ströme bei Schmelzversuch 1, sodass das Produkt die Brennkammer eher zentral und weniger am Quarzglas anliegend die verlässt (Abbildung 46 links).

Aus Abbildung 45 und Abbildung 46 lässt sich die Ausprägung der Plasmaflamme herauslesen. Da sich das Ende der Quarzröhre 305 mm von der Messingspitze entfernt befindet und die Flamme innerhalb der Röhre bis 113 mm vor dem Ende reicht, ist die Flamme 192 mm lang. Die Kontaktzeit der Probe mit der Flamme wird mithilfe von Formel (3) berechnet. Die bekannte Rohrdimension von 38 mm Innendurchmesser und der Gasstrom von zweimal 30 L/min (dies entspricht $1 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$) werden dafür in Formel (3) eingesetzt.

$$t_K = \frac{l * d^2 * \pi}{4 * \dot{V}_g} \quad (3)$$

Mit den eingesetzten Werten ergibt dies eine Zeit von:

$$t_K = \frac{0,192 * 0,038^2 * \pi}{4 * 1 * 10^{-3}} = 0,22 \text{ s}$$

4.5.2 Aluminiumoxid

In Tabelle 13 werden die Standardbildungsenthalpie und die Standardentropie von festem und flüssigem Aluminiumoxid dargestellt. In Tabelle 14 sind die thermophysikalischen Kenngrößen für das feste α -Aluminiumoxid gelistet (NIST; Chase 1998).

Tabelle 13: Standardbildungsenthalpie und Standardbildungsentropie für festes und flüssiges α -Aluminiumoxid

$\Delta_f H_m^\circ \text{ liquid} \left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \right]$	$S_m^\circ \text{ liquid, 1bar} \left[\frac{\text{J}}{\text{mol} \cdot \text{K}} \right]$	$\Delta_f H_m^\circ \text{ solid} \left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \right]$	$S_m^\circ \text{ solid, 1bar} \left[\frac{\text{J}}{\text{mol} \cdot \text{K}} \right]$
-1620,57	67,27	-1675,69	50,92

Tabelle 14: Parameter A–H für die Temperaturkorrelationen thermophysikalischer Größen von festem Al_2O_3 im Temperaturbereich von 298-2327 K

Temperaturkorrelationsbereich [K]	298-2327
A	102,4290
B	38,74980
C	-15,91090
D	2,628181
E	-3,007551
F	-1717,930
G	146,9970
H	-1675,690

Mit diesen Werten wird die Wärmekapazität nach Formel (4), die Veränderung der Enthalpie nach Formel (5) und die Entropie nach Formel (6) berechnet.

$$C_{p,m}^{\circ} = A + B * t + C * t^2 + D * t^3 + \frac{E}{t^2} \quad (4)$$

$$H_m^{\circ} - H_m^{\circ}_{298,15} = A * t + B * \frac{t^2}{2} + C * \frac{t^3}{3} + D * \frac{t^4}{4} - \frac{E}{t} + F - H \quad (5)$$

$$S_m^{\circ} = A * \ln(t) + B * t + C * \frac{t^2}{2} + D * \frac{t^3}{3} - \frac{E}{2 * t^2} + G \quad (6)$$

Die benötigte Wärmemenge für das Erhitzen der Aluminiumoxidprobe von Raumtemperatur (ca. 25 °C) auf Schmelztemperatur (Tabelle 5) wird mittels Formel (5) berechnet:

$$\begin{aligned} \Delta H_m^{\circ}(Al_2O_3) &= 102,4290 * \frac{2323}{1000} + 38,74980 * \frac{\left(\frac{2323}{1000}\right)^2}{2} - 15,91090 * \frac{\left(\frac{2323}{1000}\right)^3}{3} + 2,628181 \\ &* \frac{\left(\frac{2323}{1000}\right)^4}{4} + \frac{3,007551}{\frac{2323}{1000}} - 1717,930 + 1675,690 = 254,20 \frac{kJ}{mol} \end{aligned}$$

Die Schmelzenthalpie (Schmelzwärme) wird laut Formel (7) durch Subtraktion der Bildungsenthalpie des Feststoffs, von der Bildungsenthalpie der Schmelze (gemäß Tabelle 13) erhalten.

$$\Delta_{fus}H_m^{\circ} = \Delta_f H_m^{\circ} liquid - \Delta_f H_m^{\circ} solid \quad (7)$$

Daraus lässt sich folgender Wert für die Schmelzenthalpie berechnen:

$$\Delta_{fus}H_m^{\circ}(Al_2O_3) = -1620,57 + 1675,69 = 55,12 \frac{kJ}{mol}$$

Für die gesamte benötigte Wärmemenge beim Aufschmelzen wird entsprechend Formel (8) die Schmelzwärme zur fühlbaren Wärme zwischen Raumtemperatur und Schmelztemperatur addiert.

$$\Delta_{ges}H_m^{\circ} = \Delta H_m^{\circ} + \Delta_{fus}H_m^{\circ} \quad (8)$$

Für das Schmelzen einer Aluminiumoxidprobe wird demnach folgende Wärme benötigt:

$$\Delta_{ges}H_m^{\circ}(Al_2O_3) = 254,20 + 55,12 = 309,32 \frac{kJ}{mol}$$

Die molare Enthalpie und die massenbezogene spezifische Enthalpie haben den in Formel (9) dargestellten Zusammenhang über die molare Masse.

$$\Delta_{ges}h^\circ = \frac{\Delta_{ges}H_m^\circ}{M} \quad (9)$$

Für Aluminiumoxid ergibt das den folgenden Wert:

$$\Delta_{ges}h^\circ(Al_2O_3) = \frac{309,32}{101,94} = 3,0343 \frac{kJ}{g}$$

Mit der Dichte der Probe lässt sich, wie in Formel (10) dargestellt, auch die volumenbezogene Enthalpie berechnen.

$$\Delta_{ges}H_V^\circ = \Delta_{ges}h^\circ * \rho \quad (10)$$

Die Volumenbezogene Enthalpie für das Aufschmelzen der Aluminiumoxidprobe weist folgenden Wert auf:

$$\Delta_{ges}H_V^\circ(Al_2O_3) = 3,0343 * 3,97 = 12,0 \frac{kJ}{cm^3} = 12,0 \frac{J}{mm^3}$$

Abbildung 47 und Abbildung 48 zeigen die Aluminiumoxidprobe nach Schmelzversuch 1. Es lassen sich vereinzelt ein paar Schmelzperlen erkennen. Der Schmelzpunkt von 2050 °C wird also überschritten, jedoch ist die Kontaktzeit mit dem Plasma sehr kurz (Schmelzperlen treten nur sehr vereinzelt auf). In Abbildung 49 und Abbildung 50 ist die Aluminiumoxidprobe nach Schmelzversuch 2 dargestellt. Beim Vergleich der Bilder von Schmelzversuch 1 mit denen von Schmelzversuch 2 fällt auf, dass die Schmelzperlen bei Schmelzversuch 2 häufiger auftreten. Dies ist aufgrund der höheren abgegebenen Mikrowellenleistung in das Magnetron und der dadurch bedingten höheren Temperatur des Plasmas zu erwarten.

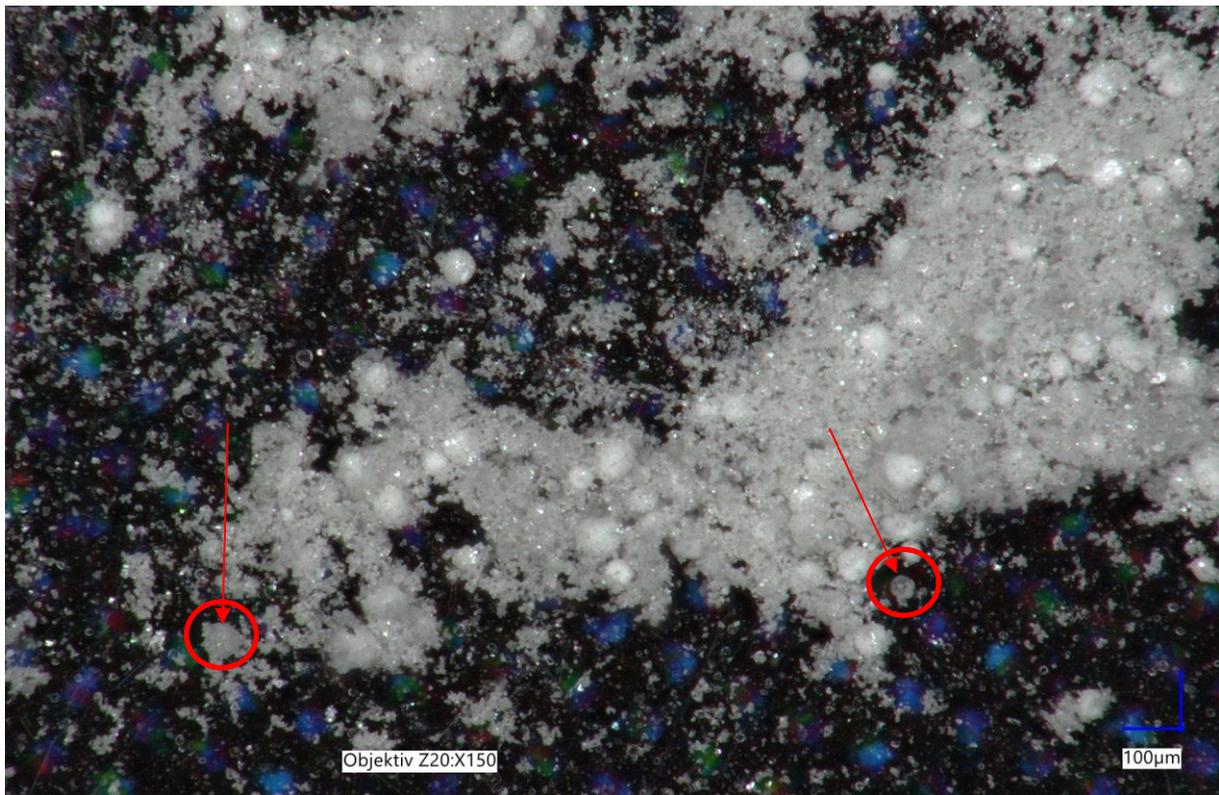


Abbildung 47: Aluminiumoxidprobe nach Schmelzversuch 1, exemplarische Schmelzperlen mit Kreisen und Pfeilen markiert

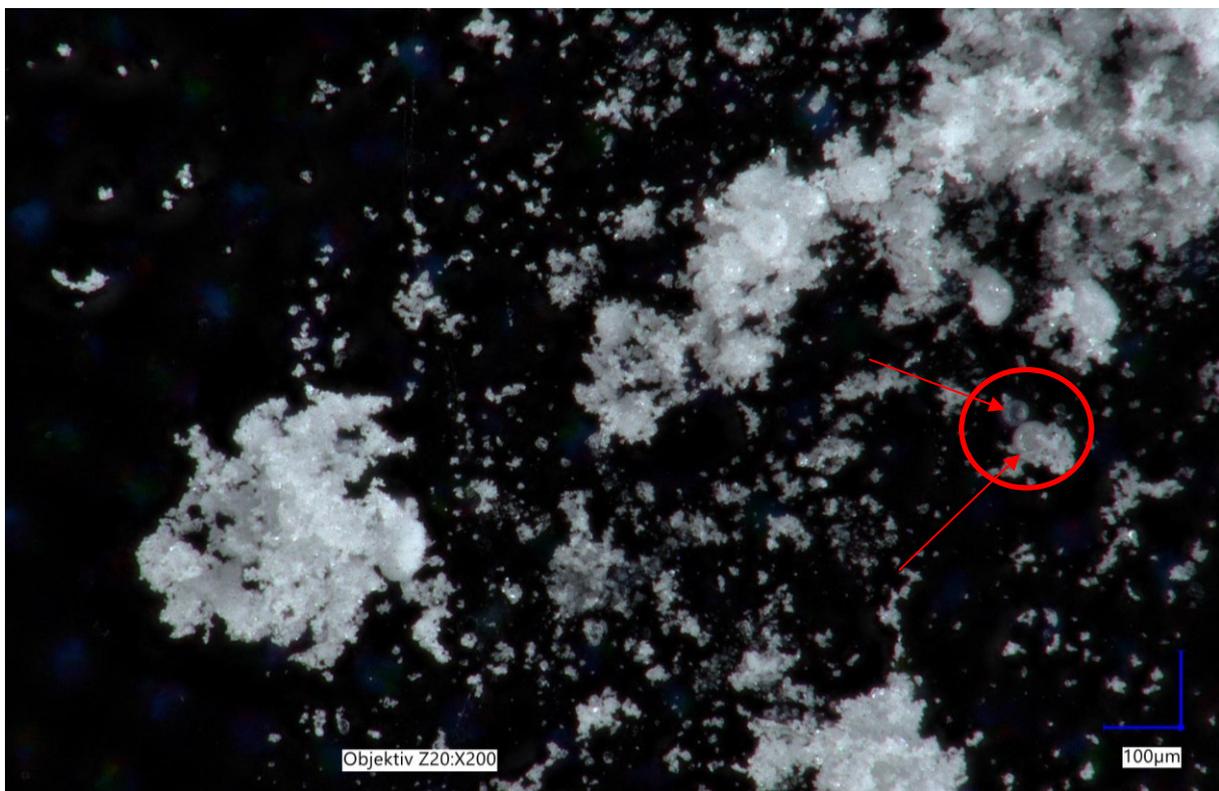


Abbildung 48: Seitenspiegelaufnahme der Aluminiumoxidprobe nach Schmelzversuch 1, Schmelzperlen mit Kreisen und Pfeilen markiert

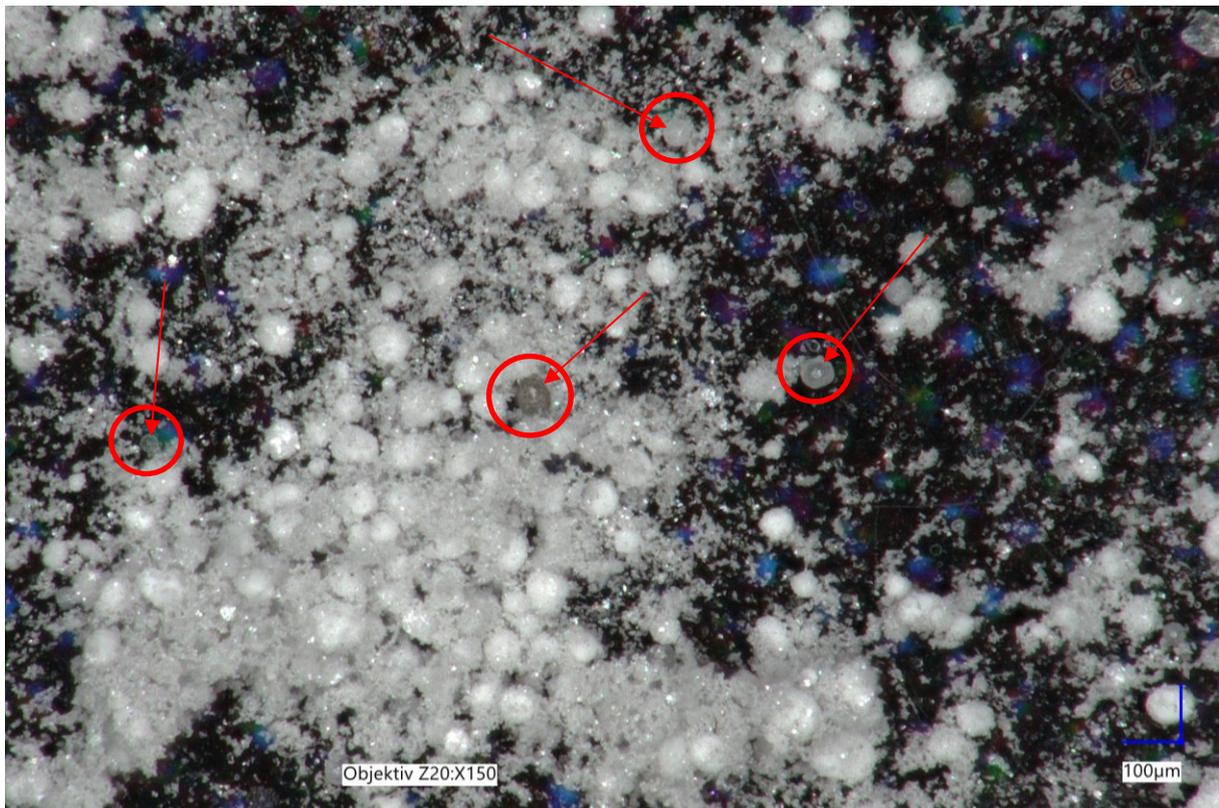


Abbildung 49: Aluminiumoxidprobe nach Schmelzversuch 2, Schmelzperlen mit Kreisen und Pfeilen markiert

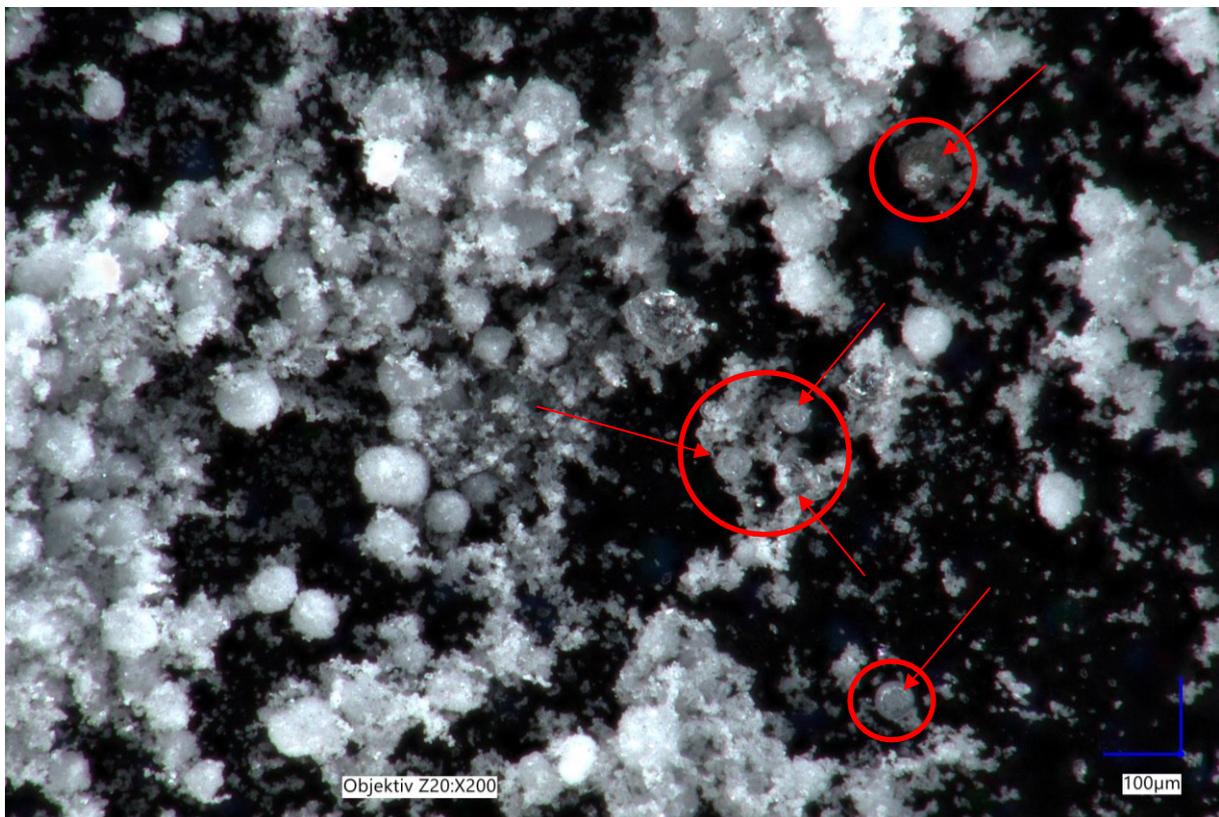


Abbildung 50: Seitenspiegelaufnahme der Aluminiumoxidprobe nach Schmelzversuch 2, Schmelzperlen mit Kreisen und Pfeilen markiert

Die Schmelzperlen weisen einen Durchmesser von knapp unter 50 μm auf (zur Berechnung wird ein Wert von 45 μm angenommen). Unter der Annahme von idealen Kugeln entspricht das Volumen der Schmelzperlen somit:

$$V_{\text{Perle}}(\text{Al}_2\text{O}_3) = \frac{1}{6} * \pi * 0,045^3 = 4,8 * 10^{-5} \text{ mm}^3 \quad (11)$$

Die Wärmemenge, um eine einzelne Aluminiumoxid-Schmelzperle zu erzeugen, wird laut Formel (12) berechnet.

$$Q = \Delta_{\text{ges}} H_V^\circ * V \quad (12)$$

Durch einsetzen in die Formel wird folgender Wert erhalten:

$$Q_{\text{Perle}}(\text{Al}_2\text{O}_3) = 12,0 * 4,8 * 10^{-5} = 5,8 * 10^{-4} \text{ J} = 0,58 \text{ mJ}$$

Wäre der gesamte Rohrquerschnitt gemäß kubisch-dichtester Kugelpackung mit Perlen gefüllt, lässt sich die maximale, theoretisch mögliche Anzahl an Perlen im Rohrquerschnitt laut Formel (13) berechnen.

$$N_{\text{Perle}} = \frac{\frac{D^2 * \pi}{4}}{\frac{d^2 * \pi}{4}} * 0,5 = \frac{D^2}{d^2} * 0,5 \quad (13)$$

Für Aluminiumoxid entspricht dies folgender Anzahl:

$$N_{\text{Perle}}(\text{Al}_2\text{O}_3) = \frac{38^2}{0,045^2} * 0,5 = 356543$$

Die notwendige Wärmemenge für das gesamte Aufschmelzen ergibt sich in diesem Fall aus Formel (14).

$$Q_{\text{ges}} = Q_{\text{Perle}} * N_{\text{Perle}} \quad (14)$$

Die benötigte Wärmemenge zum Erzeugen der Maximaldichte an Schmelzperlen im Rohrquerschnitt des Versuchsaufbaus entspricht dann:

$$Q_{\text{ges}}(\text{Al}_2\text{O}_3) = 5,8 * 10^{-4} * 356543 = 207 \text{ J}$$

Um die hierfür erforderliche Leistung des Plasmas abzuschätzen, wird dieser Wert laut Formel (15) durch die Kontaktzeit dividiert.

$$P_{\text{Plasma}} = \frac{Q_{\text{ges}}}{t_k} \quad (15)$$

Die benötigte Plasmaleistung zum Schmelzen von annähernd dicht gepacktem Aluminiumoxid beträgt demnach:

$$P_{Plasma}(Al_2O_3) = \frac{207}{0,22} = 940 \text{ W} = 0,94 \text{ kW}$$

Der benötigte Leistungsfaktor der Plasmabrennkammer wird laut Formel (16) durch eine Division der Plasmaleistung mit der abgegebenen Mikrowellenleistung des Magnetrons in Beziehung gesetzt:

$$\eta = \frac{P_{Plasma}}{P_o} \quad (16)$$

Schmelzversuch 2 (dieser hatte viele gut sichtbare Schmelzperlen) lässt sich somit der folgende benötigte Leistungsfaktor zuordnen:

$$\eta = \frac{0,94}{2,30} = 41 \%$$

Obwohl die applizierte Mikrowellenleistung demnach theoretisch sogar zum Aufschmelzen von annähernd dicht gepacktem Aluminiumoxid ausreichend wäre, ergaben sich Abweichungen gegenüber der Praxis. Dies ist auf folgende Argumente zurückzuführen:

- Die Temperaturverteilung wird in diesem Berechnungsmodell als konstant gegenüber dem Rohrquerschnitt betrachtet, was in der Praxis nicht der Fall ist. Der Großteil der Probe durchläuft die heißere Zone nicht.
- Somit ist auch die Kontaktzeit der meisten Probenkörner mit dem Plasma im realen Aufbau kürzer als der angenommene Wert. Die Probe strömt nicht aus dem Zentrum des Koaxialresonators und wird teilweise von Hüllgas mitgerissen. Das Verhältnis des Volumenstromes an Plasmagas zum Volumenstrom an Hüllgas ist zur Optimierung der Kontaktzeit ausschlaggebend.

4.5.3 Zirkonoxid

Beide Schmelzversuche weisen keine sichtbare Veränderung der Zirkonoxidprobe auf. Die Probe wird bei der kurzen Kontaktzeit mit dem Plasma nicht auf die Schmelztemperatur erhitzt. Dies ist Abbildung 51 ersichtlich. Abbildung 52 zeigt eine Seitenspiegelaufnahme der Zirkonoxidprobe nach Schmelzversuch 1. In Abbildung 53 und Abbildung 54 ist die Zirkonoxidprobe nach Schmelzversuch 2 dargestellt. In Tabelle 15 werden die Standardbildungsenthalpie und die Standardentropie von festem und flüssigem Zirkonoxid dargestellt. In Tabelle 16 sind die thermophysikalischen Kenngrößen für festes Zirkonoxid gelistet (NIST; Chase 1998; NIST).

Tabelle 15: Standardbildungsenthalpie und Standardbildungsentropie für festes und flüssiges Zirkonoxid

$\Delta_f H^\circ_{\text{liquid}} \left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \right]$	$S^\circ_{\text{liquid, 1bar}} \left[\frac{\text{J}}{\text{mol} \cdot \text{K}} \right]$	$\Delta_f H^\circ_{\text{solid}} \left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \right]$	$S^\circ_{\text{solid, 1bar}} \left[\frac{\text{J}}{\text{mol} \cdot \text{K}} \right]$
-1023,16	74,65	-1097,46	50,34

Tabelle 16: Parameter A–H für die Temperaturkorrelationen thermophysikalischer Größen von festem ZrO_2 im Temperaturbereich von 298-1478 K und von 1478-2950 K

Temperaturkorrelationsbereiche [K]	298-1478	1478-2950
A	69,20001	74,47520
B	8,548290	0,000000
C	-0,862921	0,000000
D	0,246374	0,000000
E	-1,382767	0,000000
F	-1123,115	-1115,333
G	123,7954	138,0247
H	-1097,463	-1097,463

Zur Berechnung von Wärmekapazität, Änderung der Enthalpie und Entropie werden, analog zum Aluminiumoxid, Formel (4), (5) und (6) angewendet. Die Werte aus Tabelle 16 und Tabelle 5 werden in Formel (5) eingesetzt. Hierbei ist zu beachten, dass es zwei verschiedene Koeffizienten für die entsprechenden Temperaturbereiche gibt. Da in der Zirkonoxidprobe keine Schmelzperlen gefunden werden und die Korngröße sehr schmalbandig verteilt ist, wird zur Berechnung des Volumens der Äquivalentdurchmesser der HELOS-Analyse verwendet. Dieser beträgt laut 4.4.3 Korngrößenverteilung ca. 93,5 μm . Mithilfe von Formel (11) ergibt dies ein Volumen von $4,3 \cdot 10^{-4} \text{ mm}^3$. Dies bedeutet, dass laut Formel (12) eine Gesamtwärme von 5,50 mJ benötigt wird, um ein einzelnes Korn zu schmelzen. Dies ist die Zehnfache Menge, die benötigt wird, um eine Aluminiumoxidperle zu erzeugen. Die berechneten theoretischen Werte für Aluminiumoxid und Zirkonoxid laut Formel (4) bis (16) sind in Tabelle 17 dargestellt.

Tabelle 17: Benötigte Energie zum Schmelzen, benötigte Leistung und theoretisch benötigter Leistungsfaktor für das Schmelzen von Aluminiumoxid und Zirkonoxid.

Kenngroße	Aluminiumoxid	Zirkonoxid
Q_{Perle} [mJ]	0,58	5,50
Q_{ges} [J]	207	454
P_{Plasma} [kW]	0,94	2,1
$\eta_{\text{Schmelzversuch 2}}$ [%]	41	91
$\eta_{\text{Schmelzversuch 1}}$ [%]	70	160

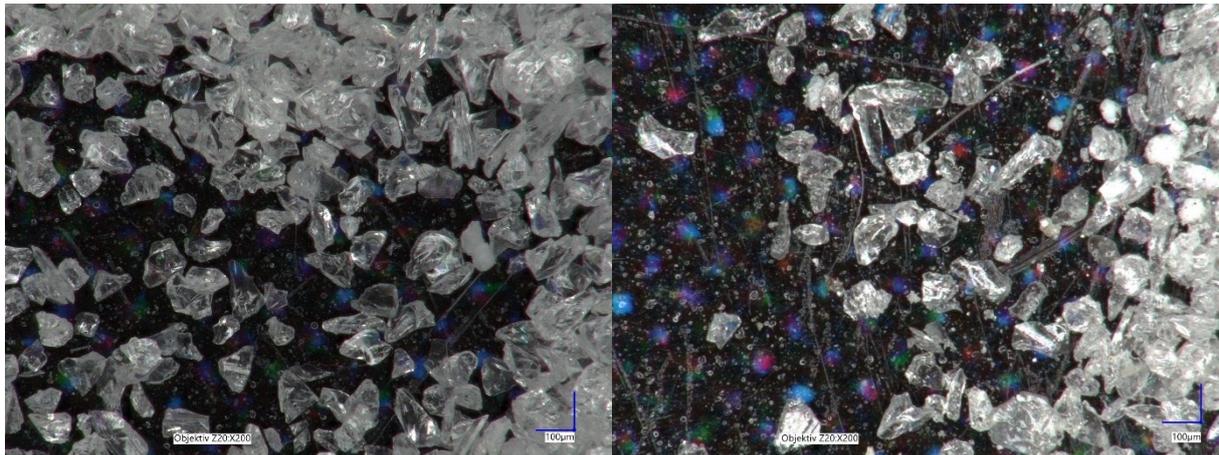


Abbildung 51: Zirkonoxid Reinprobe (links) und Probe aus Schmelzversuch 1 (rechts)

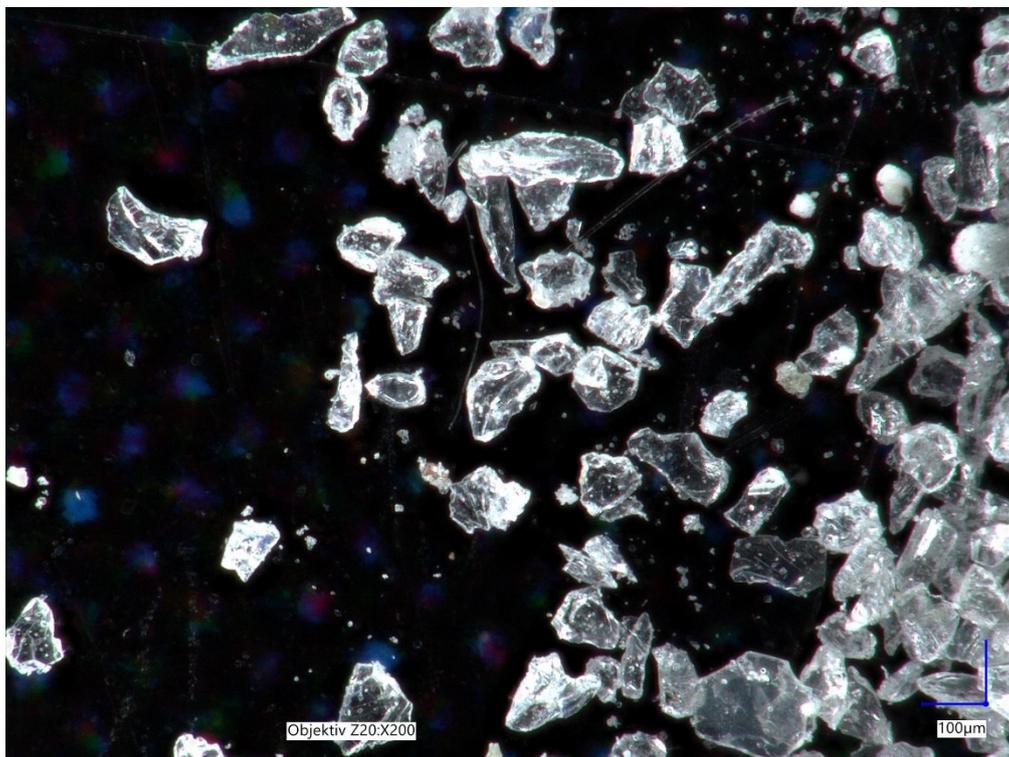


Abbildung 52: Seitenspiegelaufnahme der Zirkonoxidprobe nach Schmelzversuch 1

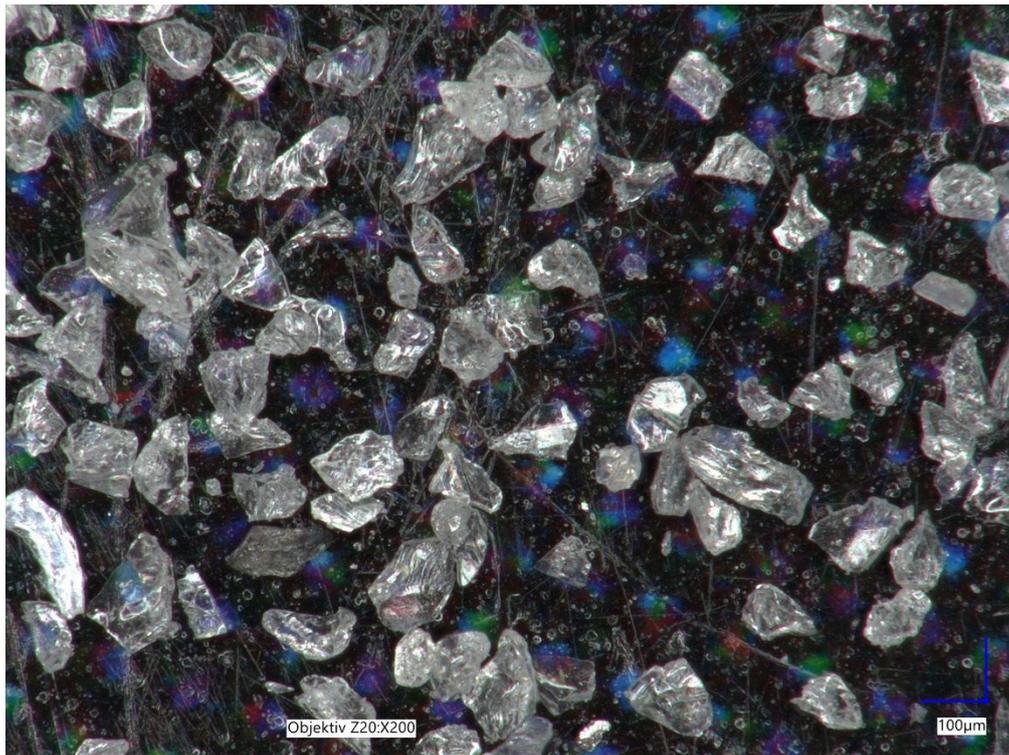


Abbildung 53: Zirkonoxidprobe nach Schmelzversuch 2

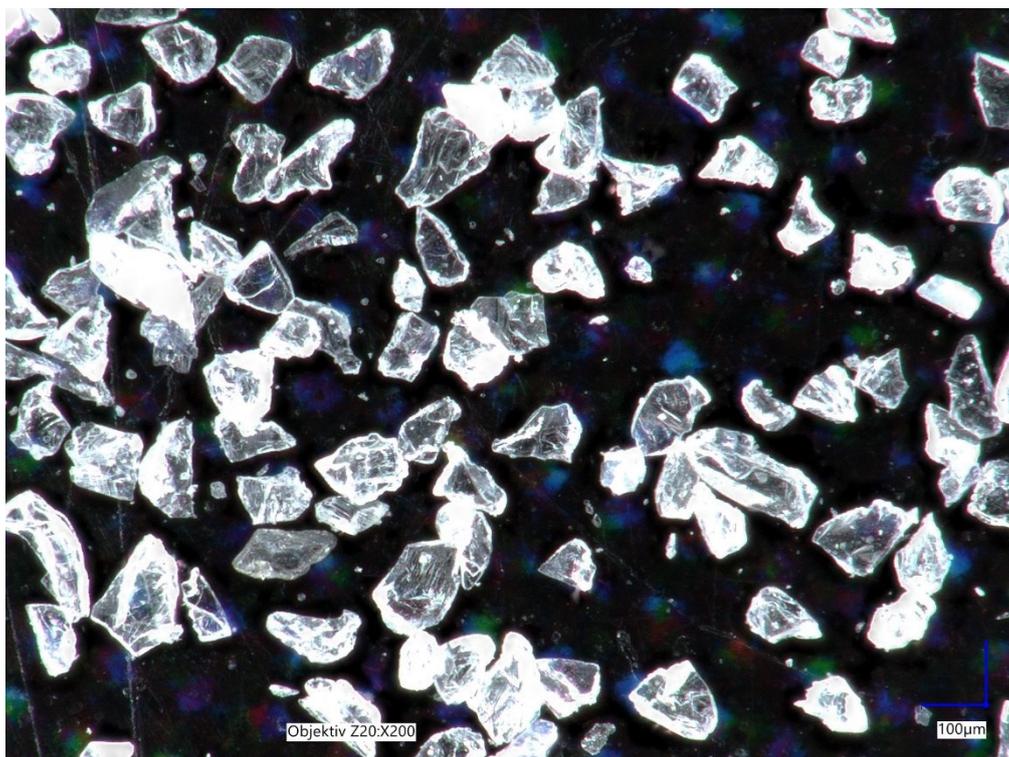


Abbildung 54: Seitenspiegelaufnahme der Zirkonoxidprobe nach Schmelzversuch 2

5 Zusammenfassung und Ausblick

In der Plasmachemie wird zwischen dem thermischen und dem nichtthermischen Plasma unterschieden. Der Unterschied liegt in der Temperatur der Teilchen, welche sich im Plasma befinden. Beim nichtthermischen Plasma weisen die Elektronen eine höhere Temperatur auf als die größeren Ionen oder Neutralteilchen. Dies ist beispielsweise bei organischen Materialien oder bei der Oberflächenbeschichtung von Vorteil. Die Elektronen haben ausreichend Energie für diverse Reaktionsmechanismen. Diese Art von Plasma wird eher im Unterdruck oder im Vakuum erzeugt. Vom thermischen Plasma wird unter Atmosphärendruck typischerweise bei Temperaturen ab 10^3 bis 10^4 K gesprochen (typische Vertreter sind Lichtbögen oder ICP). Definitionsgemäß ist ein atmosphärisches Mikrowellenplasma also ein nichtthermisches Plasma. Da sich die Temperatur des Plasmas jedoch im Grenzbereich zwischen thermisch und nichtthermisch befindet (im unteren Bereich der 10^3 K) trifft die Bezeichnung „Übergangsplasma“ eher zu.

Es gibt verschiedene Ausführungsarten von Brennkammern für das Mikrowellenplasma. In dieser Arbeit werden eine TIA-Brennkammer und eine APS-Brennkammer gebaut. Die TIA-Brennkammer lässt sich in einem größeren Resonanzbereich zünden als die APS-Brennkammer. Es entsteht eine kleine Fackel (ca. 1 bis 5 cm hoch und 0,5 cm breit). Diese wird in der Praxis überwiegend zum Schneiden von Metallteilen eingesetzt. Die APS-Brennkammer erzeugt eine größere Fackel (ca. 20 cm hoch und 2 cm breit) welche sich in ihrer Form und Ausprägung stärker beeinflussen lässt. Ein mögliches Einsatzgebiet dieser Anordnung betrifft die Gasreinigung (NOx). Die TIA-Brennkammer dient in dieser Arbeit nur zur Beweisführung der Zündfähigkeit eines Plasmas mit dem vorhandenen Mikrowellensystem von 2,45 GHz. Diese Brennkammer kann am Anfang nicht zünden, da die Spielpassung zu groß dimensioniert ist. Durch das Schaffen einer leitenden Verbindung innerhalb der Spielpassung kann die TIA-Brennkammer zünden. Bei einer erneuten Anfertigung des Kupferrohres für die Brennkammer muss die Toleranz kleiner ausfallen, um eine unerwünschte vorzeitige Entladung zu verhindern.

Nach erfolgreicher Zündung innerhalb der APS-Brennkammer werden Schmelzversuche mit Aluminiumoxid- und Zirkonoxidpulver durchgeführt. Die Brennkammer kann mit reinem Argon unter Verwendung des Koppellements zünden. Die Argon-Luft Mischung kann nur ohne Koppellement zünden. Dies kann unterschiedliche Ursachen haben. Die Plasma- und Hüllgasgeschwindigkeit und deren Verhältnis haben einen besonders starken Einfluss auf das Plasma. Eine Verwendung des Koppellements kommt demnach erst nach Optimierung der Probenaufgabe (im Versuch wird die Probe axial aufgegeben) und der Durchflussmenge der Gase wieder in Betracht. Die Schmelzversuche können dadurch vermutlich bessere Ergebnisse liefern.

Das Zirkonoxid kann im Rahmen dieser Arbeit nicht geschmolzen werden. Der theoretisch benötigte Leistungsfaktor bei Schmelzversuch 1 beträgt 160 % und bei Schmelzversuch 2 sind es 91 %. Die durchgeführten Berechnungen weisen auf einen zu hohen Wert der Korngröße, eine zu kurze Kontaktzeit und einen zu niedrigen Wert für die abgegebene Mikrowellenleistung hin. Das Verändern dieser Faktoren könnte eine Zirkonoxidschmelze ermöglichen.

Das Schmelzen (bzw. das Sphäroidisieren) des Aluminiumoxidpulvers ist prinzipiell erfolgreich. In den Berechnungen ist erkennbar, dass der theoretisch benötigte Leistungsfaktor bei Schmelzversuch 1 einen Wert von 70% beträgt und bei Schmelzversuch 2 einen Wert von 41% aufweist. Dies erklärt auch die geringere Anzahl an Schmelzperlen bei Schmelzversuch 1 im Vergleich zu Schmelzversuch 2. Zwar wird die Probe bei diesen Schmelzversuchen nicht vollständig sphäroidisiert, jedoch ist eindeutig zu erkennen, dass ein Teil der Probe schmilzt. Die Ausbeute lässt sich vermutlich durch eine Variation der oben bereits genannten Einflussfaktoren weiter steigern. Eine andere Aufgabearbeit könnte ebenfalls die Ausbeute verbessern. Durch eine radiale Aufgabe könnte die Kontaktzeit an die Probenmasse angepasst werden und es kämen keine Partikel in den Zündbereich des Plasmas. Ebenfalls wegfallen würde der Luftkontakt mit dem Plasmagas vor der Zündung.

Das Magnetron liefert bei Schmelzversuch 1 theoretisch 1,35 kW und bei Schmelzversuch 2 theoretisch 2,3 kW. Die Plasmaleistung liegt laut den Berechnungen in der Nähe von 0,94 kW (knapp darunter, da ein Schmelzen der Aluminiumoxidprobe zwar möglich ist, jedoch nicht die vollständige Probe schmilzt). Zirkonoxid benötigt laut Berechnungen 2,1 kW. Dieser Wert kann durch eine Erniedrigung des Korngrößenwertes (Probe zerkleinern) gesenkt werden. Durch ein längeres Rohr kann die Kontaktzeit erhöht werden, was zu einer besseren Energieübertragung führen würde.

Das APS-System könnte in Zukunft für die Aufbereitung anderer Proben verwendet werden. Eine Anwendung in der Aktivierung von Katalysatoren ist denkbar. Durch das direkte Einspritzen der Probe in das Plasma kann die Probe homogen erhitzt werden und es entfällt das Erhitzen eines Behälters. Bei Verwendung einer Vakuum- oder Überdruckkammer kann der Kontakt mit Umgebungsluft verhindert werden. Dies ermöglicht ein Arbeiten mit gefährlichen oder explosiven Medien. Beispielsweise kann Wasserstoff als Plasmagas eingesetzt werden. Der atomare Wasserstoff im Plasma setzt, durch die exotherme Rekombination zum Wasserstoffmolekül, später in der Plasmaflamme zusätzlich Energie frei. Das kann zu einer höheren Energieausbeute führen und höhere Temperaturen erzeugen. Eine Verbesserung des Plasmas könnte schon mit einer Argon-Wasserstoff Mischung erzielt werden.

6 Verzeichnisse

Hier sind das Literaturverzeichnis und die verwendeten Formelzeichen zu finden.

6.1 Literatur

- Alexander-Katz (1919): Das Schmelzverfahren im elektrischen Lichtbogen. In: Bruno Alexander-Katz (Hg.): Quarzglas und Quarzglas. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag, S. 11–15.
- Alter s.r.l (1999): SM 1050 Switcing Power Generator for 3 KW Magnetron. SM 1050D: for main line 3 x 208V; SM1050T: for main line 3 x 400V; Technical Note.
- Alter s.r.l (2003): TM0 - TMA 2,45 GHz Remotable Microwave Head Air Cooled (TMA) or Water Cooled (TM0). TMx09: 900 W; TMx12: 1200 W; TMx15: 1500 W; TMx20: 2000 W; TMx3x: 3000 W; Technical Note.
- Atmmicrowave. Online verfügbar unter https://www.atmmicrowave.com/wp-content/uploads/flg_cpr340f.pdf.
- Baeva; Gier; Pott; Uhlenbusch; Höschele; Steinwandel (2002): Pulsed microwave discharge at atmospheric pressure for NO_x decomposition. In: J. Phys. D: Appl. Phys. 11 (1), S. 1–9. DOI: 10.1088/0963-0252/11/1/301.
- Boulos (1994): Thermal Plasmas. Fundamentals and Applications. Unter Mitarbeit von P. Fauchais und Emil Pfender. New York, NY: Springer. Online verfügbar unter <https://ebookcentral.proquest.com/lib/kxp/detail.action?docID=6700812>.
- Brandenburg (2019): Reaktoren für spezielle technisch-chemische Prozesse: Plasmachemische Reaktoren. In: Reschetilowski (Hg.): Handbuch Chemische Reaktoren, Bd. 82. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg (Springer Reference Naturwissenschaften), S. 1–27.
- CARLROTH: Aluminiumoxid. Online verfügbar unter <https://www.carlroth.com/at/de/von-a-bis-z/aluminiumoxid/p/9420.1>, zuletzt geprüft am 02.04.2024.
- Chase (1998): NIST-JANAF thermochemical tables. 4. ed. Woodbury, NY: American Institute of Physics.
- Ehlbeck; Schnabel; Polak; Winter; Woedtke; Brandenburg et al. (2011): Low temperature atmospheric pressure plasma sources for microbial decontamination. In: J. Phys. D: Appl. Phys. 44 (1), S. 13002. DOI: 10.1088/0022-3727/44/1/013002.
- Feynman; Leighton; Sands (2010): Mainly electromagnetism and matter. New millenium edition. New York: Basic Books (The Feynman lectures on physics / Feynman, Leighton, Sands, Volume 2).
- Fridman (2008): Plasma Chemistry: Camebridge University Press.
- Gadonna; Leroy; Alves; Boisse-Laporte; Leprince (2012): Study of an Axial Injection Torch. Online verfügbar unter https://www.researchgate.net/publication/282131745_Study_of_an_Axial_Injection_Torch, zuletzt geprüft am 10.03.2024.
- Gmelch; Reineke (2019): Durchblick in Optik. Mit Phänomenen, Formeln und Fragen zum Verständnis. 1. Aufl. 2019. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. Online verfügbar unter <http://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:bsz:31-epflicht-1545330>.

- Hammer (1999): Application of Plasma Technology in Environmental Techniques. In: Contrib. Plasma Phys. 39 (5), S. 441–462. DOI: 10.1002/ctpp.2150390507.
- Hitachi. Online verfügbar unter <https://www.hitachi-power-solutions.com/en/product/magnetron/magnetron/products/2m252/index.html>.
- Hong; Kim; Uhm (2004): Simulated experiment for elimination of chemical and biological warfare agents by making use of microwave plasma torch. In: Physics of Plasmas 11 (2), S. 830–835. DOI: 10.1063/1.1635822.
- Hong; Uhm; Chun; Lee; Hwang (2005 - 2005): Microwave Plasma Torch Abatement of NF₃ and SF₆. In: IEEE Conference Record - Abstracts. 2005 IEEE International Conference on Plasma Science. IEEE Conference Record - Abstracts. 2005 IEEE International Conference on Plasma Science. Monterey, CA, USA, 20.06.2005 - 23.06.2005: IEEE, S. 321.
- IFA: Zirconium(IV)-oxid. GESTIS-Stoffdatenbank. Online verfügbar unter <https://gestis.dguv.de/data?name=004000>, zuletzt geprüft am 02.04.2024.
- Janzen (1992): Plasmatechnik. Grundlagen, Anwendungen, Diagnostik. Heidelberg: Hüthig (Technische Physik, 3).
- Jin; Zhu; Border; Hieftje (1991): A microwave plasma torch assembly for atomic emission spectrometry. In: Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy 46 (3), S. 417–430. DOI: 10.1016/0584-8547(91)80039-6.
- Köhrmann (1956): Der Einfluß der Luftfeuchtigkeit auf den elektrischen Durchschlag in Luft. In: Annalen der Physik 453 (5-8), S. 379–384. DOI: 10.1002/andp.19564530518.
- Kopecki (2012): Entwicklung und spektroskopische Untersuchung eines Mikrowellen-Plasmabrenners für die Schichtabscheidung aus Pulvern. Dissertation Universität Stuttgart
- Laroussi (2012): Plasma Medicine. Applications of Low-Temperature Gas Plasmas in Medicine and Biology. Unter Mitarbeit von M. G. Kong, G. Morfill und W. Stolz. Cambridge: Cambridge University Press. Online verfügbar unter <https://ebookcentral.proquest.com/lib/kxp/detail.action?docID=907135>.
- Leins (2010): Development and spectroscopic investigation of a microwave plasma source for the decomposition of waste gases. Dissertation Universität Stuttgart.
- Moisan; Sauve; Zakrzewski; Hubert (1994): An atmospheric pressure waveguide-fed microwave plasma torch: the TIA design. In: J. Phys. D: Appl. Phys. 3 (4), S. 584–592. DOI: 10.1088/0963-0252/3/4/016.
- Moisan; Zakrzewski; Pantel; Leprince (1984): A Waveguide-Based Launcher to Sustain Long Plasma Columns through the Propagation of an Electromagnetic Surface Wave. In: IEEE Trans. Plasma Sci. 12 (3), S. 203–214. DOI: 10.1109/TPS.1984.4316320.
- NIST: aluminium oxide. NIST Chemistry WebBook, SRD 69. Online verfügbar unter <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C1344281&Mask=2>.
- NIST: zirconium dioxide. NIST Chemistry WebBook, SRD 69. Online verfügbar unter <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C1314234&Units=SI&Mask=2>, zuletzt geprüft am 28.04.2024.

- NIST: zirconium dioxide. NIST Chemistry WebBook, SRD 69. Online verfügbar unter <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C1314234&Units=SI&Mask=2&Type=JANA FS&Plot=on>, zuletzt geprüft am 28.04.2024.
- Olesik (1991): Elemental analysis using ICP-OES and ICP/MS. In: *Anal. Chem.* 63 (1), 12A-21A. DOI: 10.1021/ac00001a001.
- Pott; Doerk; Uhlenbusch; Ehlbeck; Hörschele; Steinwandel (1998): Polarization-sensitive coherent anti-Stokes Raman scattering applied to the detection of NO in a microwave discharge for reduction of NO. In: *J. Phys. D: Appl. Phys.* 31 (19), S. 2485–2498. DOI: 10.1088/0022-3727/31/19/020.
- Rutscher; Deutsch (1983): *Wissenspeicher Plasmatechnik.*
- Rutscher; Wagner (1993): Chemical quasi-equilibria: a new concept in the description of reactive plasmas. In: *Plasma Sources Sci. Technol.* 2 (4), S. 279–288. DOI: 10.1088/0963-0252/2/4/008.
- Schulz; Leins; Kopecki; Walker; Stroth (2011): Mikrowellen-Plasmabrenner bei Atmosphärendruck. In: *Vakuum in Forschung und Praxis* 23 (6), S. 6–11. DOI: 10.1002/vipr.201100475.
- Schwab (1996): *Elektromagnetische Verträglichkeit. 4., neubearb. Aufl.* Berlin: Springer.
- Suhr (1972): Organic Syntheses in the Plasma of Glow Discharges and Their Preparative Application. In: *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 11 (9), S. 781–792. DOI: 10.1002/anie.197207811.
- Tendero; Tixier; Tristant; Desmaison; Leprince (2006): Atmospheric pressure plasmas: A review. In: *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 61 (1), S. 2–30. DOI: 10.1016/j.sab.2005.10.003.
- Timmermans; Jonkers; Thomas; Rodero; Quintero; Sola et al. (1998): The behavior of molecules in microwave-induced plasmas studied by optical emission spectroscopy. 1. Plasmas at atmospheric pressure. In: *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 53 (11), S. 1553–1566. DOI: 10.1016/S0584-8547(98)00186-4.
- Wagner (2013): *Nonthermal Plasma and Physics.* In: Meichsner (Hg.): *Nonthermal plasma chemistry and physics.* Boca Raton, Fla.: CRC Press.
- Weltmann; Polak; Masur; Woedtke; Winter; Reuter (2012): Plasma Processes and Plasma Sources in Medicine. In: *Contrib. Plasma Phys.* 52 (7), S. 644–654. DOI: 10.1002/ctpp.201210061.
- Woskov; Hadidi (2002): Large electrodeless plasmas at atmospheric pressure sustained by a microwave waveguide. In: *IEEE Trans. Plasma Sci.* 30 (1), S. 156–157. DOI: 10.1109/TPS.2002.1003971.

6.2 Formelzeichen

λ_{max}	Wellenlänge des Emissionsmaximums, m
λ	Wellenlänge, m
T	Temperatur, K
t_K	Kontaktzeit, s
$\Delta_f H_m^\circ liquid$	Molare Standardbildungsenthalpie flüssig, kJ/mol
$S_m^\circ liquid, 1 bar$	Molare Standardbildungsentropie flüssig, J/mol*K
$\Delta_f H_m^\circ solid$	Molare Standardbildungsenthalpie fest, kJ/mol
$S_m^\circ solid, 1 bar$	Molare Standardbildungsentropie fest, J/mol*K
$A - H$	Koeffizienten zur Berechnung der Wärmekapazität
$C_{p,m}^\circ$	Molare Wärmekapazität, J/mol*K
t	Temperatur, K/1000
$H_m^\circ - H_m^\circ_{298,15}$	Molare Enthalpieänderung von Standardbedingungen zur gesuchten Temperatur, kJ/mol
ΔH_m°	Molare Enthalpieänderung von Standardbedingungen zur gesuchten Temperatur, kJ/mol
S_m°	Molare Entropie, J/mol*K
$\Delta_{fus} H_m^\circ$	Molare Schmelzenthalpie oder Schmelzwärme, kJ/mol
$\Delta_{ges} H_m^\circ$	Gesamte molare Enthalpieänderung, kJ/mol
$\Delta_{ges} h^\circ$	Gesamte spezifische Enthalpieänderung, kJ/g
$\Delta_{ges} H_v^\circ$	Gesamte volumenbezogene Enthalpieänderung, kJ/cm ³ bzw. J/mm ³
V_{Kugel}, V_{Perle}	Kugelvolumen, mm ³
Q	Wärmemenge, J bzw. mJ
N_{Perle}	Anzahl der Schmelzperlen
Q_{ges}	Wärmemenge über den gesamten Querschnitt hinweg, J
P_{Plasma}	Plasmaleistung, W bzw. kW
η	Leistungsfaktor der Brennkammer, %

Anhang

In Tabelle 18 sind die Geräte aufgelistet, welche in dieser Arbeit verwendet wurden. Im Anschluss daran sind Anweisungslisten für das Ein- und Ausschalten des APS- und des TIA-Systems zu finden. In Abbildung 55 der Schaltplan des ALTER-Systems dargestellt.

Tabelle 18: Verwendete Geräte

Hersteller	Produkt	Verwendungszweck
Rathgeber Transformatoren	Type DFBG 7,5/1 N Leistung: 18 kW Übersetzung: 420-400-380 / 208 V Leerlauf Strom: 25,98 / 50 A	Alter-Setup Transformator
Klöckner Moeller	DIL 4 M	Leitungsschutzschalter
Klöckner Moeller	11 SI DIL M	
Schneider Electric	XAL 1L1643	Not-Aus-Taste gelb-grau
Alter	5 kW Switch-Mode Microwave Power Generator SM1050D 3x208V	Alter-Setup Netzteil
Hitachi	2M252 Fixed Frequency Continuous Wave Magnetron	Alter-Setup Magnetron
Muegge	Microwave Power Supply MX3000X-111KL 3x400 V Bauj.: 11/08	Muegge-Setup Netzteil
Muegge	Magnetron Head MH3000S-218BB Bauj.: 01/08	Muegge-Setup Magnetronkopf
Muegge	Detector MM1001 B	Schottky-Diode
Alan	RF Detector 50D1-	Schottky-Diode
Astex	Isolator WR340 6kW C13447 (Seriennummer 1243)	Isolator
Astex	D13604 (Seriennummer 1876)	Zweistifttuner
National Electronics	WR340 TunerA	Dreistifttuner
Sympatech	Helos Vario KF Magic	Zur Korngrößenanalyse
Sympatech	Rodos T4.1 (Gerät Nr. 904)	Zur Korngrößenanalyse und
Sympatech	Vibri ID-Nr. 1464	zur Probenaufgabe
Conrad	Laboratory Power Supply PS-405D	Zur Probenaufgabe

Ein- und Ausschalten der APS-Brennkammer unter Verwendung des ALTER-Setups

Zündung der Brennkammer:

- Voreinstellung der gewünschten Leistung am Netzteil
- SCHUTZBRILLE AUFSETZEN!
- Kontrolle Schalter am Magnetron, an der Voltmeter-Anzeige und am Netzteil auf OFF.
- Start des Kühlwassers durch Magnetron (>3 L/min) und Isolator (>3 L/min) (Kontrolle ob beim Auslass Wasser ankommt).
- Einstellen der benötigten Volumenströme von Plasmagas und Hüllgas (zwischen 10 und 90 L/min).
- Drehstromkabel an das Stromnetz anschließen (NOTAUS AB JETZT IN GREIFBARER NÄHE HALTEN).
- Netzteil auf ON:
- Strahlungsmessung der Emission und Schottky-Diode muss einen Spannungswert von null anzeigen.
- Schalter an der Voltmeter-Anzeige auf ON.
- Strahlungsmessung der Emission und Schottky-Diode muss einen Spannungswert von null anzeigen.
- Schalter am Magnetron auf ON.
- Strahlungsmessung der Emission
- Falls die Brennkammer noch nicht gezündet hat, muss die Schottky-Diode einen Spannungswert von unter null anzeigen.
- In diesem Fall müssen die Stifte im Tuner und der Koaxialresonator in ihrer Höhe verändert werden, um den Betrag des Spannungswertes der Schottky-Diode zu senken (dieser beträgt im Idealfall null).

Ein- und Ausschalten der APS-Brennkammer unter Verwendung des ALTER-Setups

Abschalten der Brennkammer:

- Schalter am Magnetron auf OFF.
- Schalter an der Voltmeter-Anzeige auf OFF.
- Netzteil auf OFF.
- Stromverbindung zum Drehstrom unterbrechen.
- **SCHUTZBRILLE ERST JETZT ABNEHMEN!**
- Kühlwasser und Gase bis zum Abkühlen noch offen lassen.
- Kühlwasser schließen.
- Plasmagas schließen.
- Nach vollständigem Abkühlen des Fackelbereichs Hüllgas schließen.

Ein- und Ausschalten der TIA-Brennkammer unter Verwendung des ALTER-Setups

Zündung der Brennkammer:

- Voreinstellung der gewünschten Leistung am Netzteil
- SCHUTZBRILLE AUFSETZEN!
- Kontrolle Schalter am Magnetron, an der Voltmeter-Anzeige und am Netzteil auf OFF.
- Start des Kühlwassers durch Magnetron (>3 L/min) und Isolator (>3 L/min) (Kontrolle ob beim Auslass Wasser ankommt).
- Einstellen des benötigten Volumenstromes an Plasmagas (zwischen 10 und 90 L/min).
- Drehstromkabel an das Stromnetz anschließen (NOTAUS AB JETZT IN GREIFBARER NÄHE HALTEN).
- Netzteil auf ON:
- Strahlungsmessung der Emission und Schottky-Diode muss einen Spannungswert von null anzeigen.
- Schalter an der Voltmeter-Anzeige auf ON.
- Strahlungsmessung der Emission und Schottky-Diode muss einen Spannungswert von null anzeigen.
- Schalter am Magnetron auf ON.
- Strahlungsmessung der Emission
- Falls die Brennkammer noch nicht gezündet hat, muss die Schottky-Diode einen Spannungswert von unter null anzeigen.
- In diesem Fall müssen die Stifte im Tuner und der Koaxialresonator in ihrer Höhe verändert werden, um den Betrag des Spannungswertes der Schottky-Diode zu senken (dieser beträgt im Idealfall null, das TIA-Plasma zündet aber auch bei Werten unter -1 V).

Ein- und Ausschalten der TIA-Brennkammer unter Verwendung des ALTER-Setups

Abschalten der Brennkammer:

- Schalter am Magnetron auf OFF.
- Schalter an der Voltmeter-Anzeige auf OFF.
- Netzteil auf OFF.
- Stromverbindung zum Drehstrom unterbrechen.
- **SCHUTZBRILLE ERST JETZT ABNEHMEN!**
- Kühlwasser und Gase bis zum Abkühlen noch offen lassen.
- Kühlwasser schließen.
- Nach vollständigem Abkühlen der Brennkammer Plasmagas schließen.

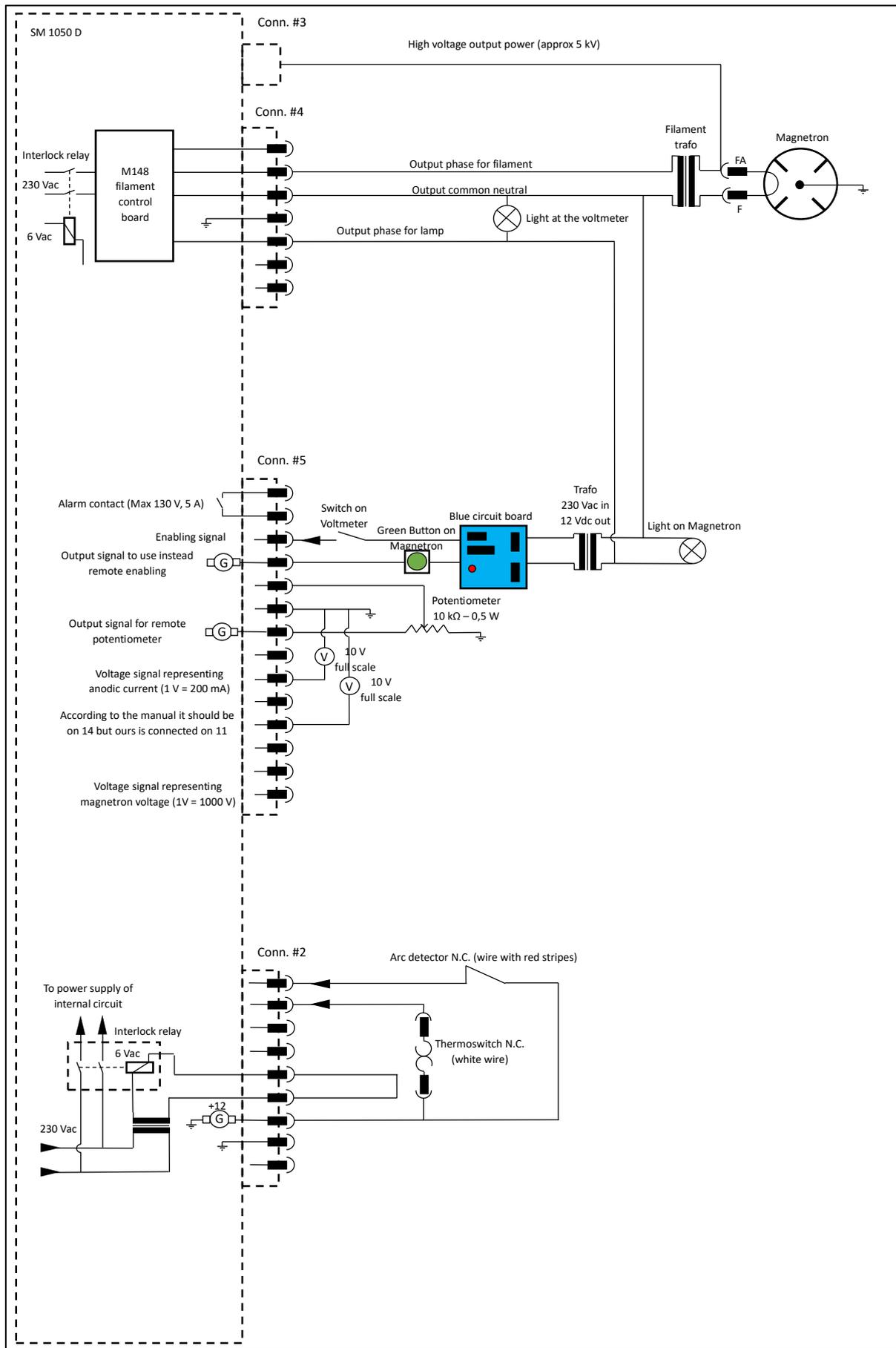


Abbildung 55: Schaltplan ALTER-Netzteil und HITACHI-Magnetron (Alter s.r.l 1999, 2003)

Die nachfolgenden Abbildungen (Abbildung 56, Abbildung 57, Abbildung 58, Abbildung 59, Abbildung 60, Abbildung 61 und Abbildung 62) stellen eine Standardmäßige WR340-Hohlleiterverbindung, die APS-Brennkammer und die TIA-Brennkammer dar.

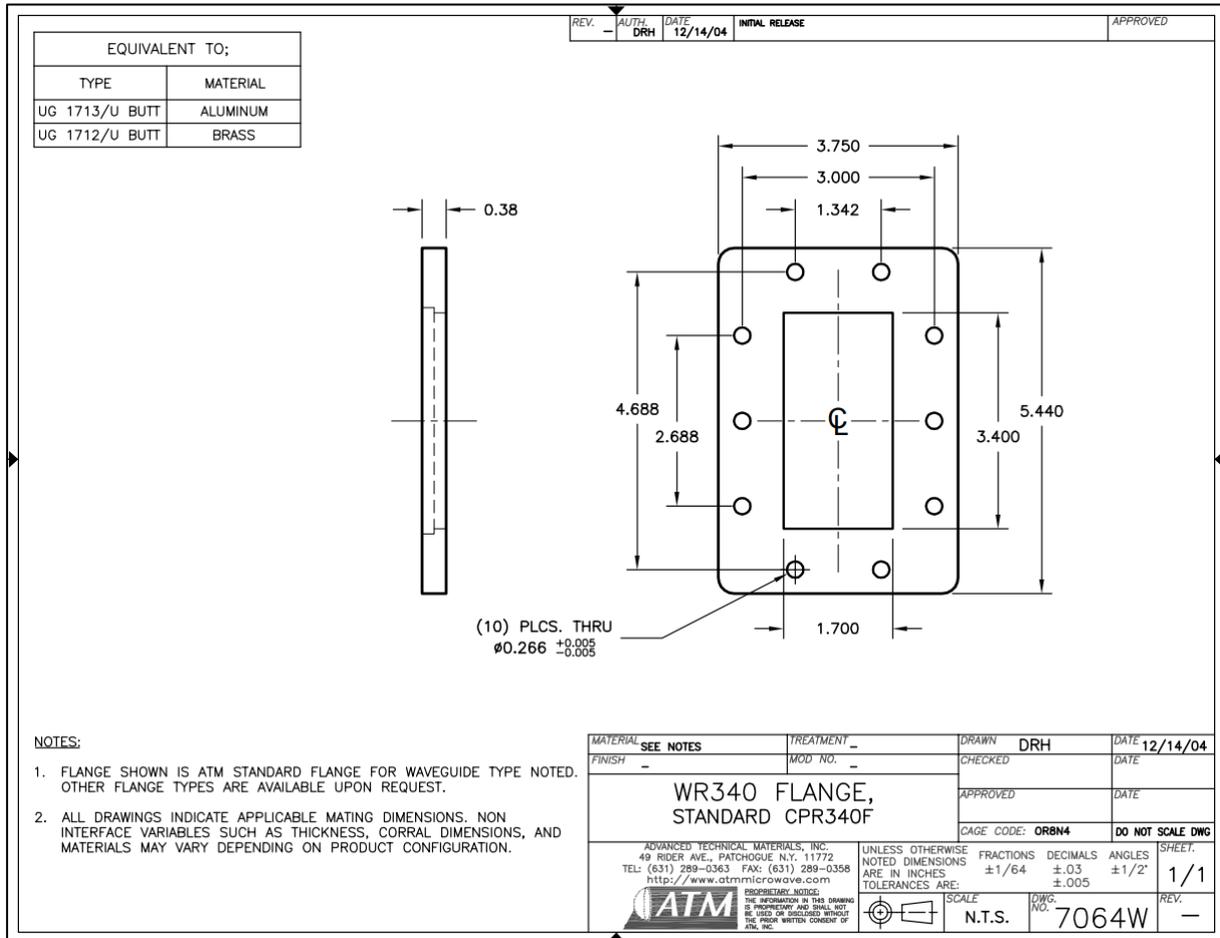


Abbildung 56: WR340-Verbindung Maße in Zoll (Atmmicrowave)

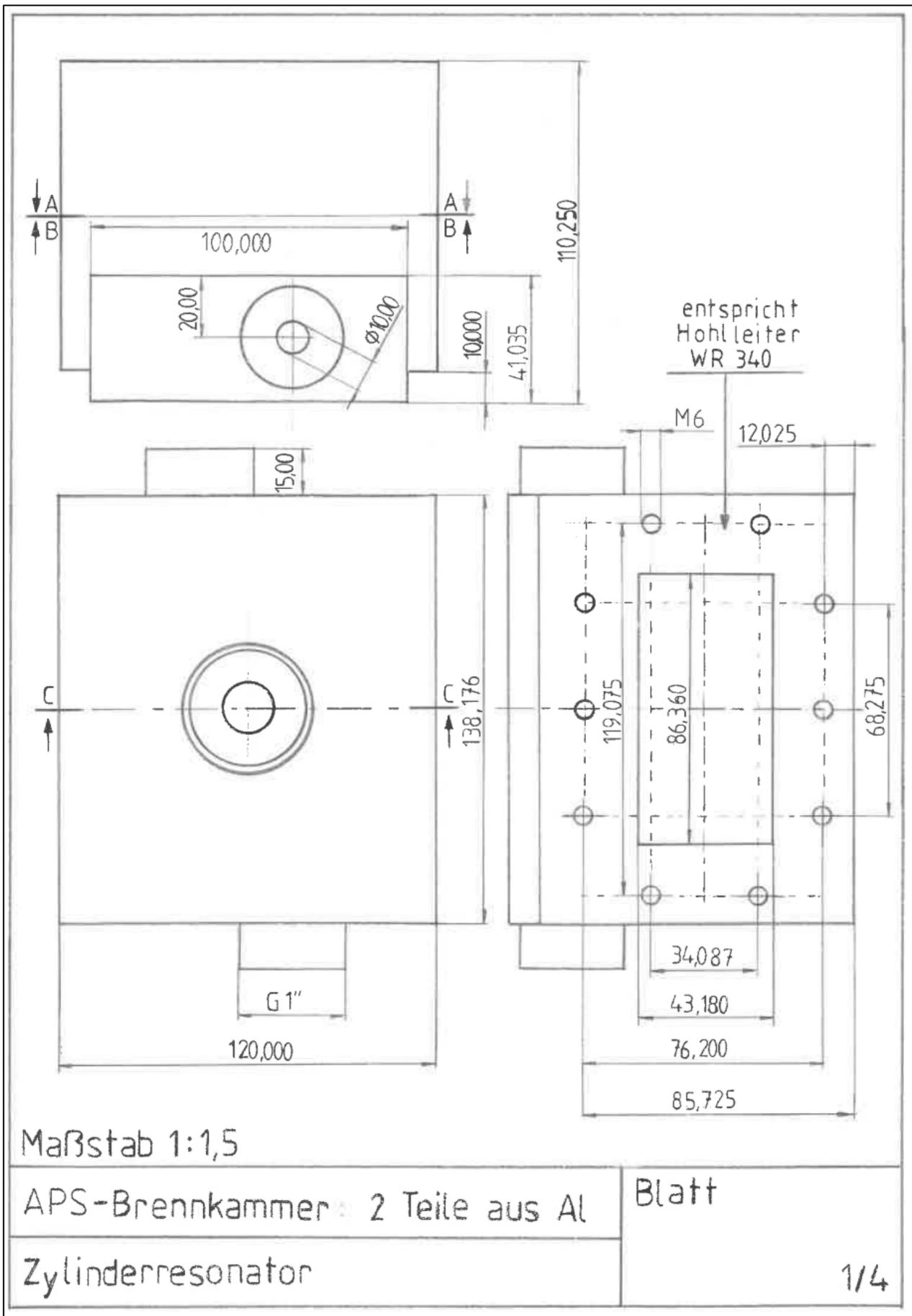


Abbildung 57: APS-Brennkammer Teil 1 von 4 Maße in Millimeter gemäß Leins (2010)

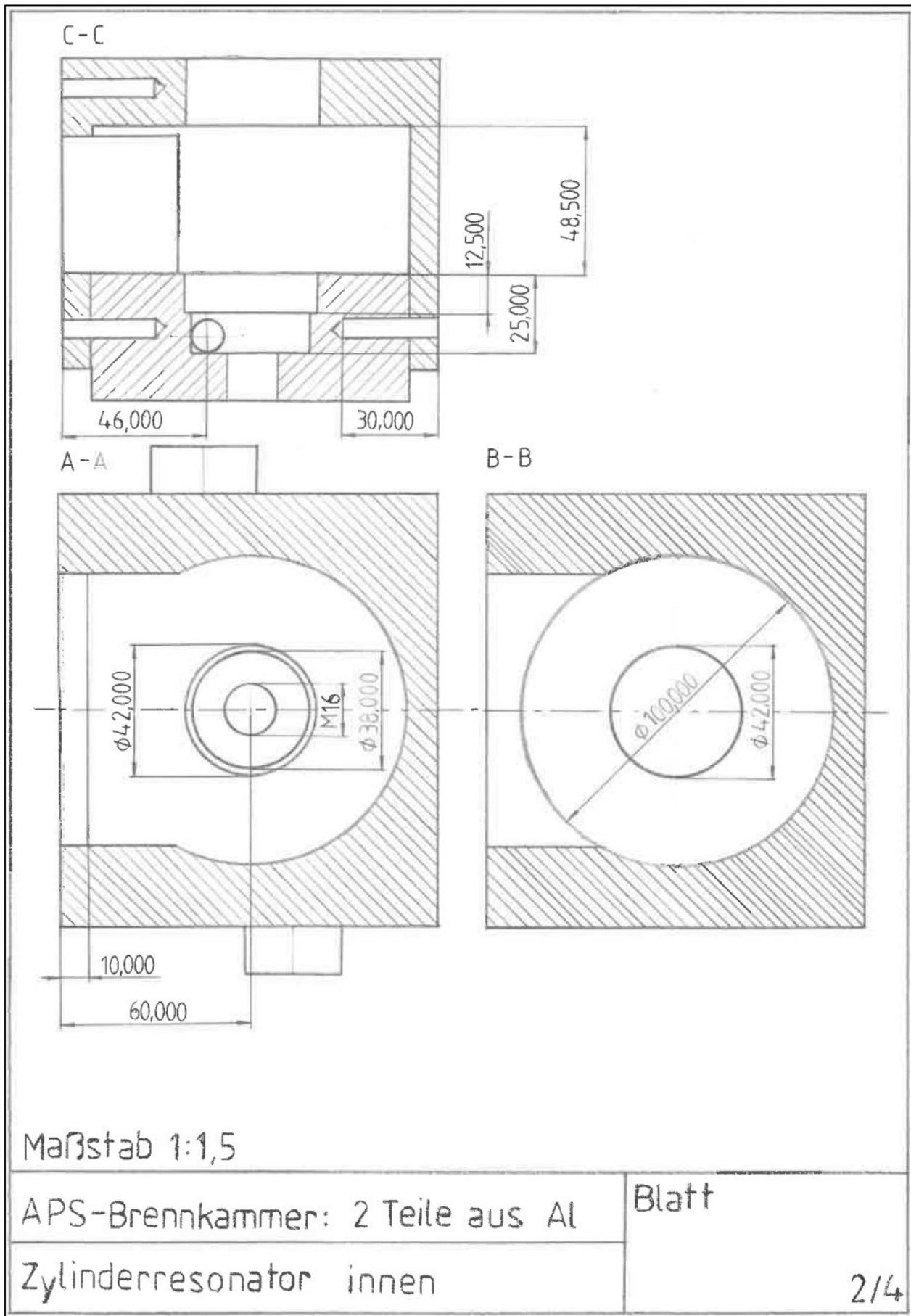


Abbildung 58: APS-Brennkammer Teil 2/4 Maße in Millimeter gemäß Leins (2010)

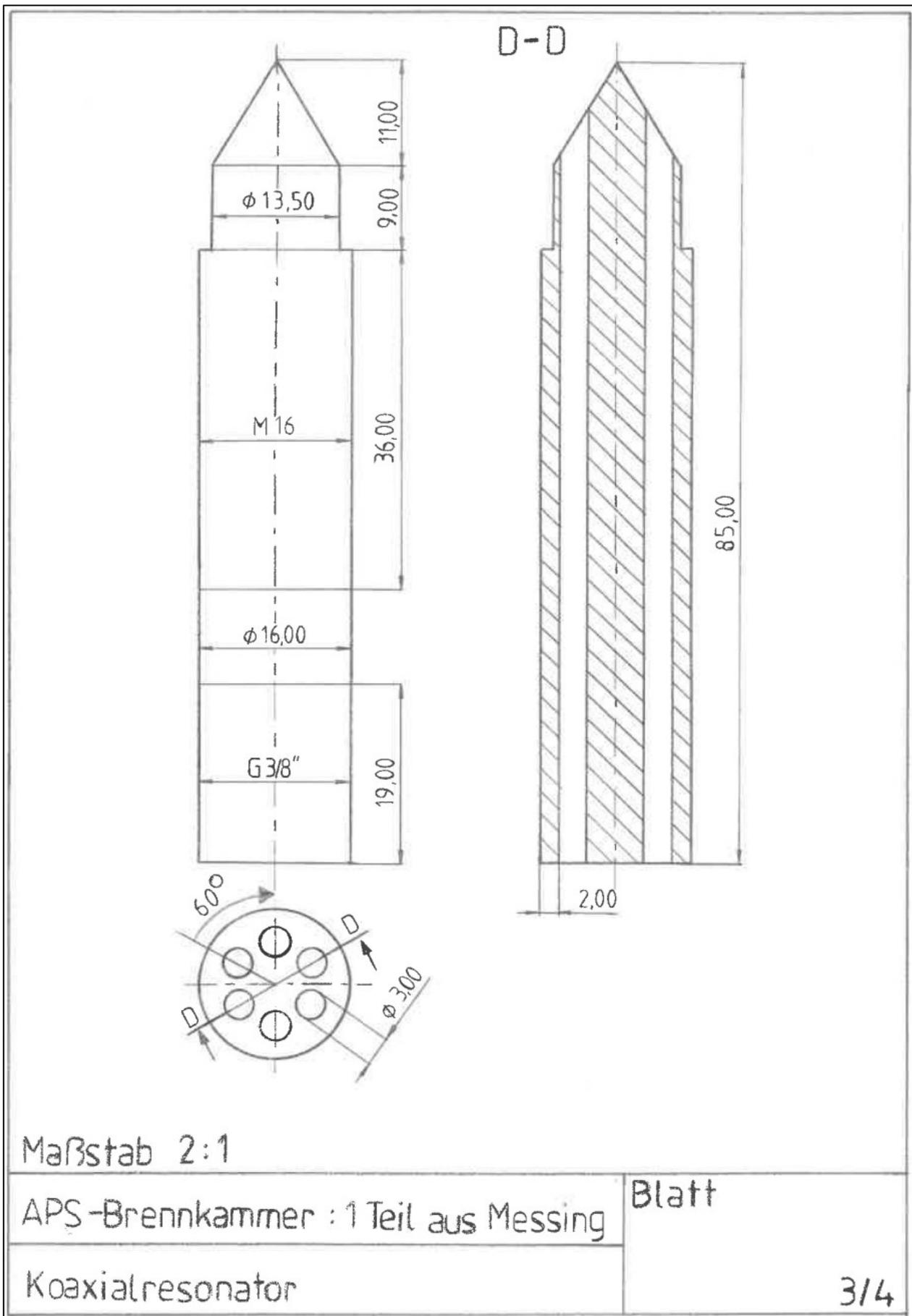


Abbildung 59: APS-Brennkammer Teil 3/4 Maße in Millimeter gemäß Leins (2010)

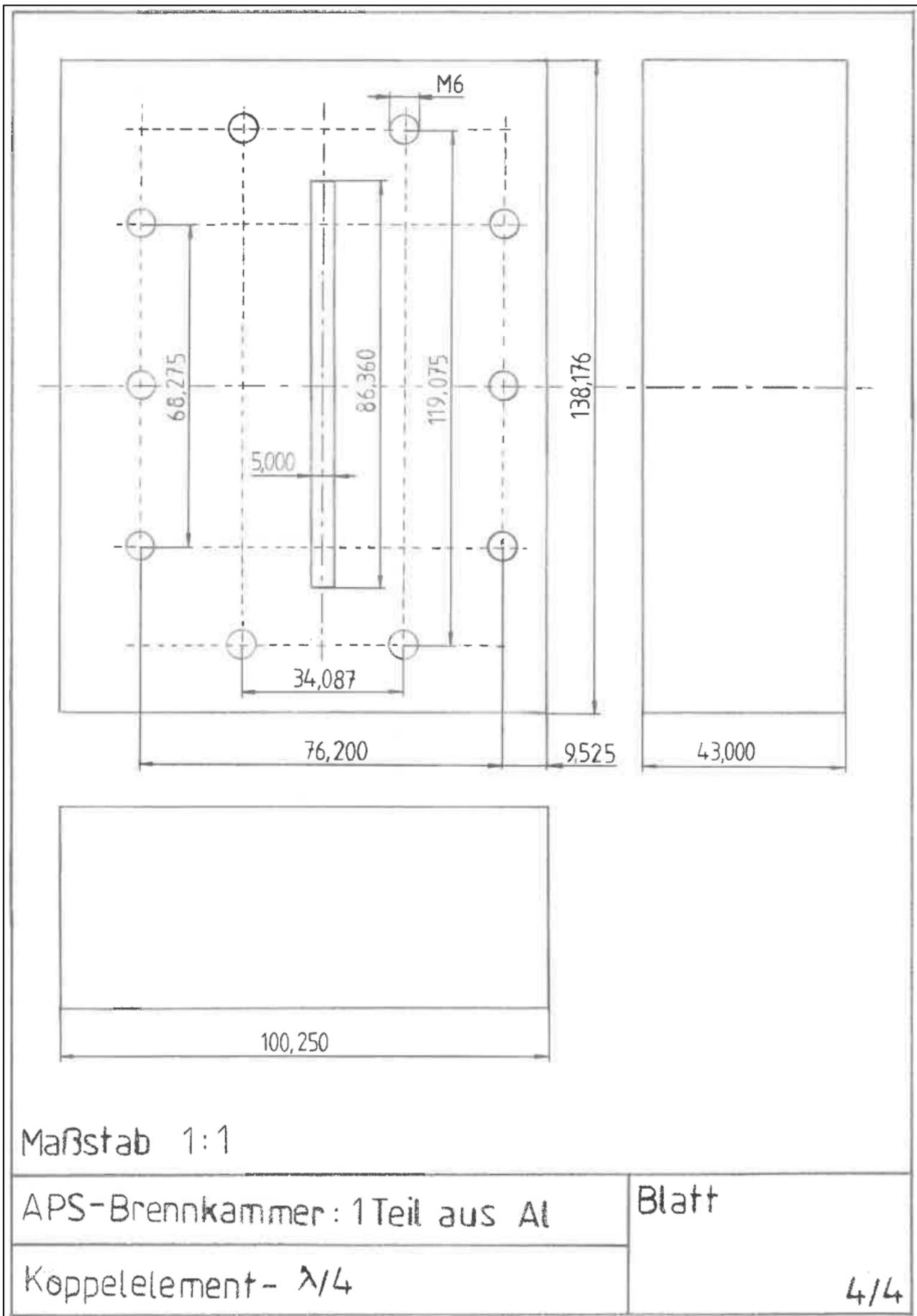


Abbildung 60: APS-Brennkammer Teil 4/4 Maße in Millimeter gemäß Leins (2010)

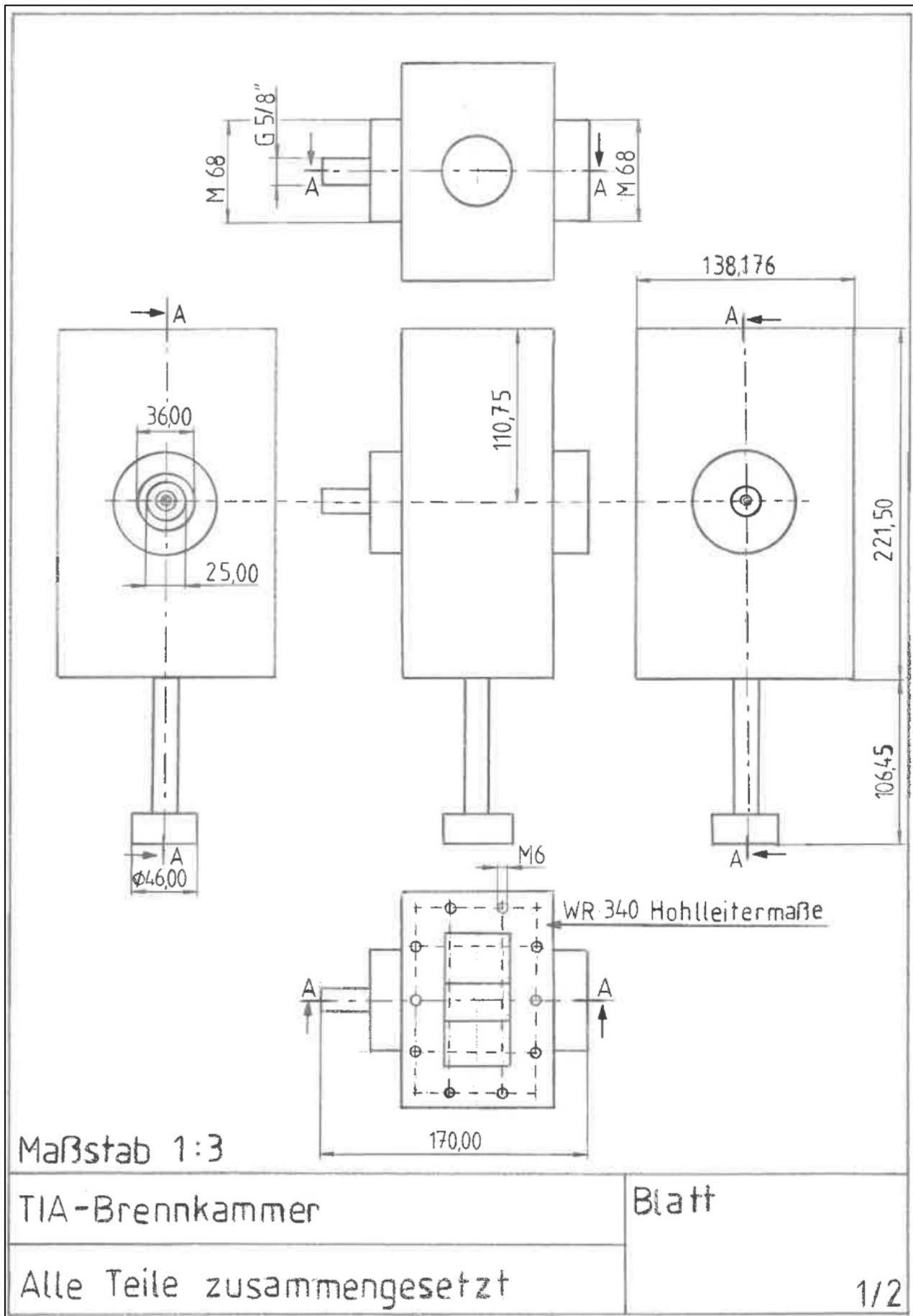


Abbildung 61: TIA-Brennkammer Teil 1/2 Maße in Millimeter gemäß Gadonna et al. (2012)

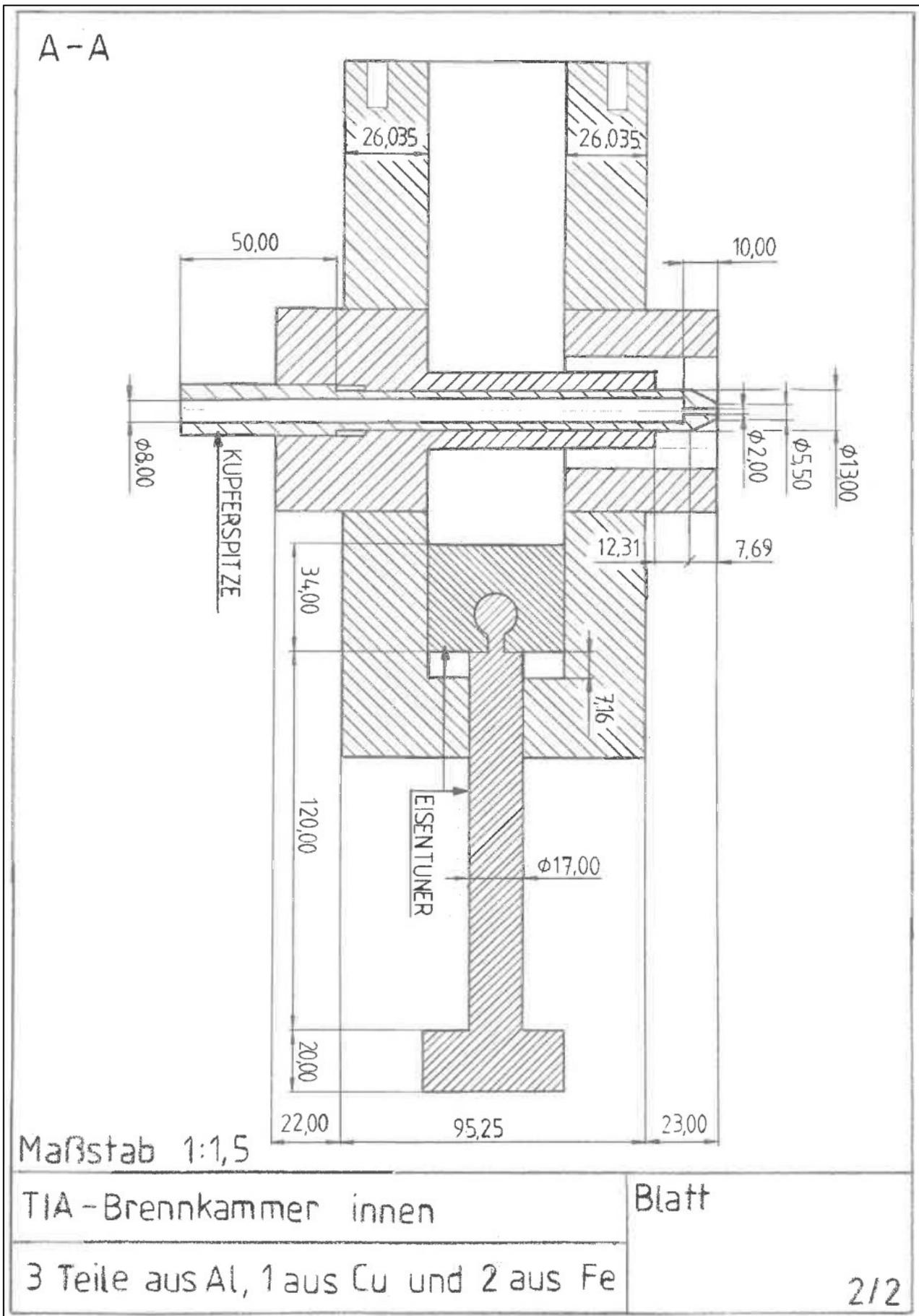


Abbildung 62: TIA-Brennkammer Teil 2/2 Maße in Millimeter gemäß Gadonna et al. (2012)

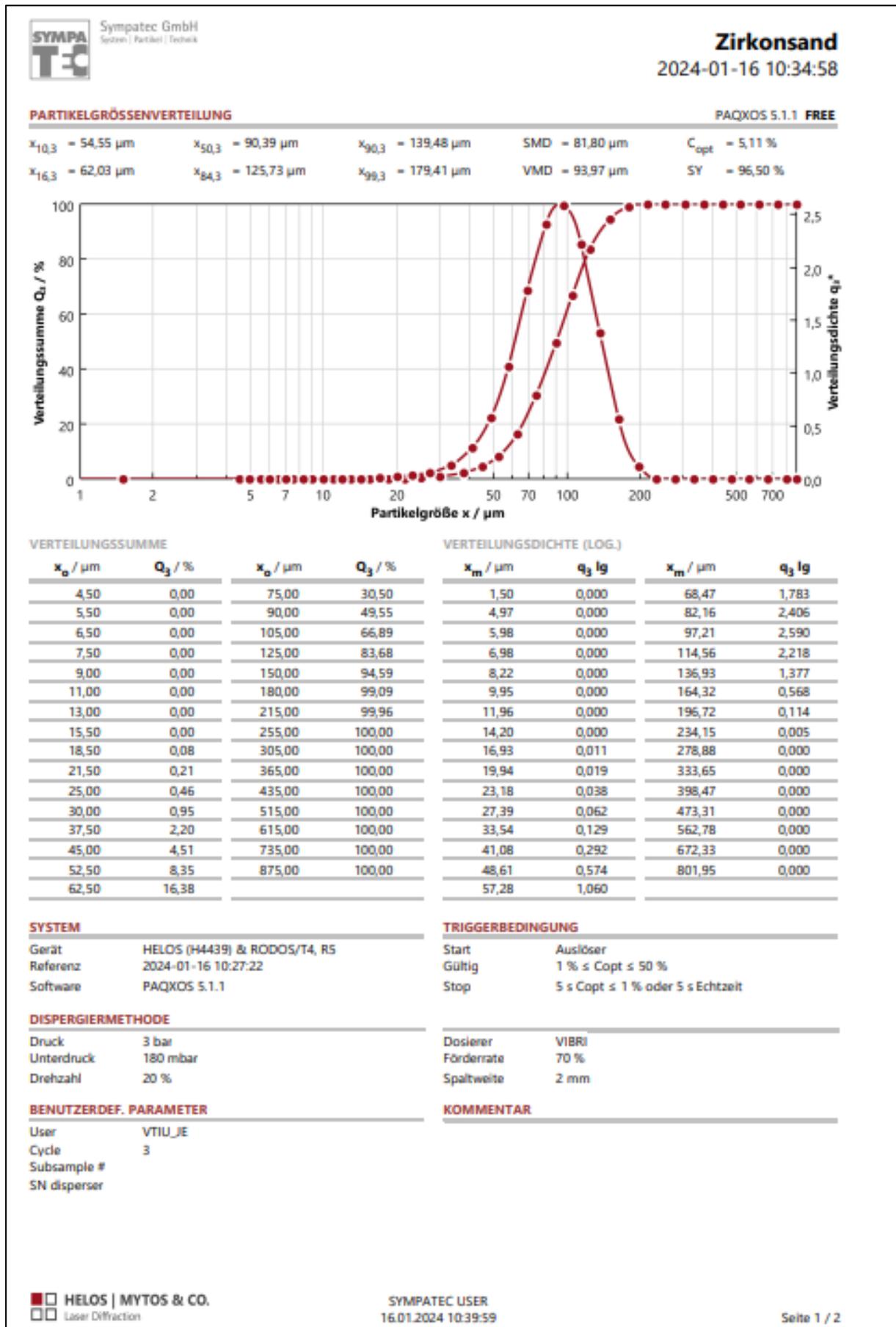


Abbildung 63: Ergebnis der Korngrößenanalyse der Zirkonoxid-Reinprobe mittels HELOS

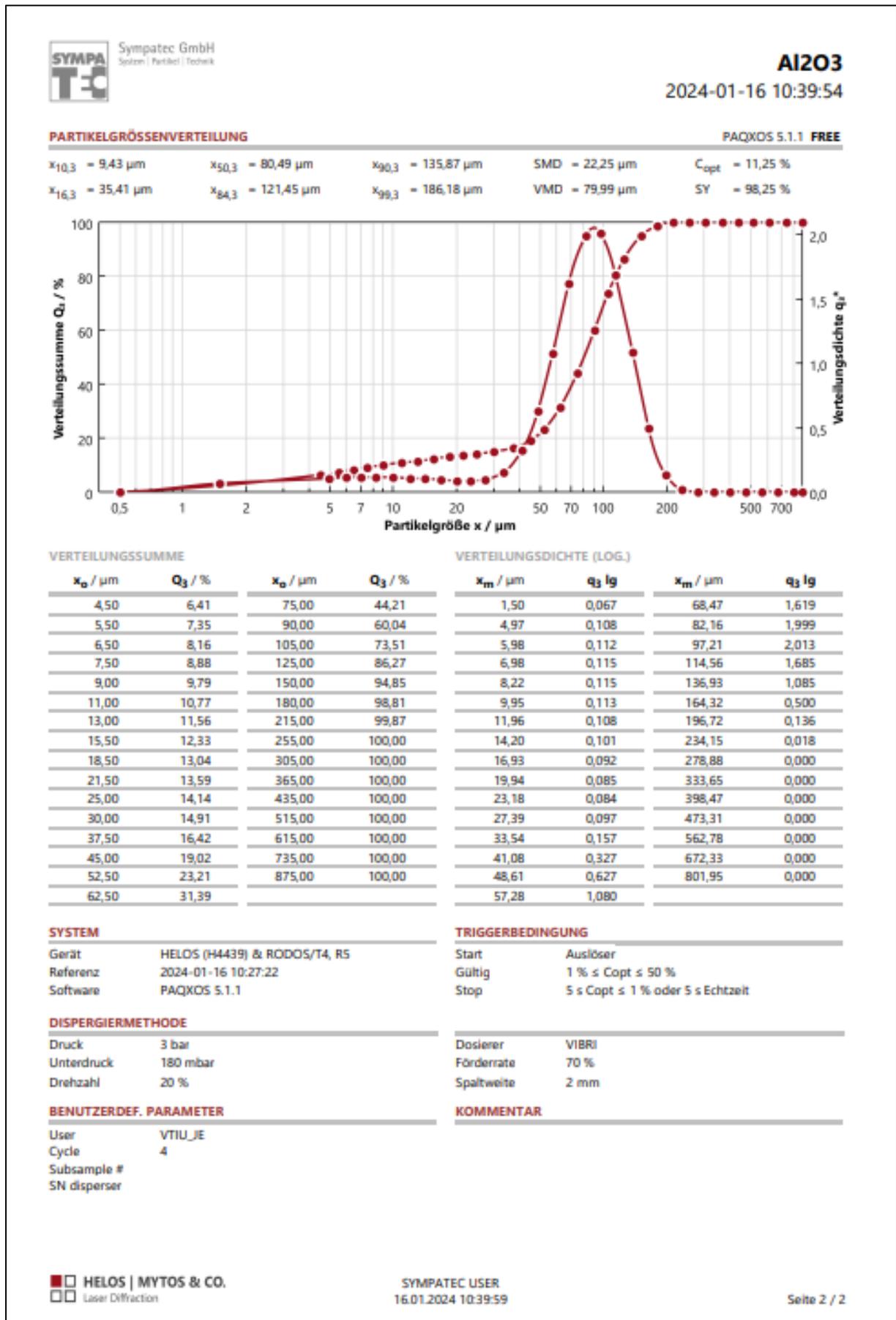


Abbildung 64: Ergebnis der Korngrößenanalyse der Aluminiumoxid-Reinprobe mittels HELOS

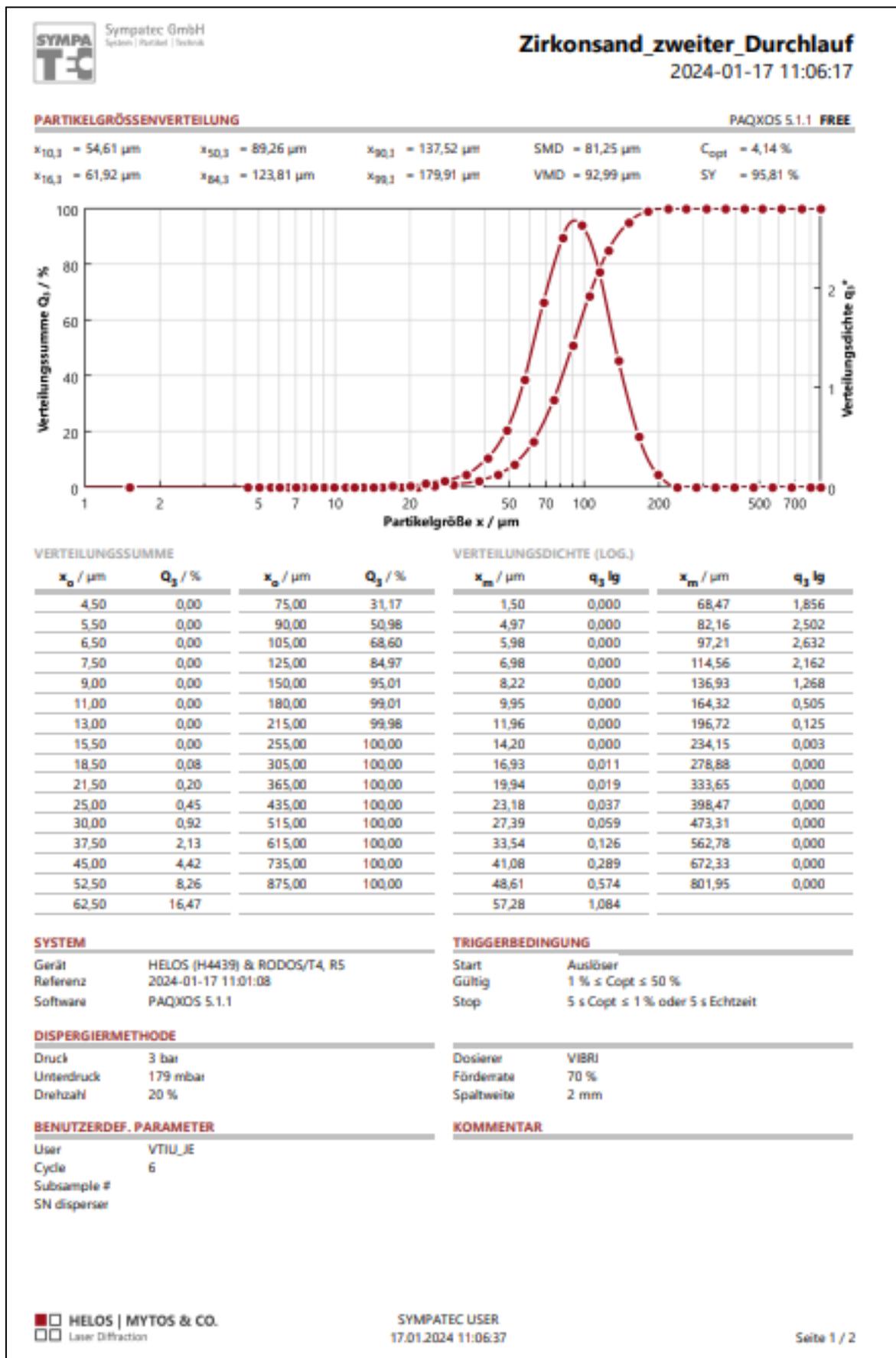


Abbildung 65: Ergebnis der Korngrößenanalyse der Zirkonoxid-Reinprobe mittels HELOS nach zwei RODOS-Durchläufen

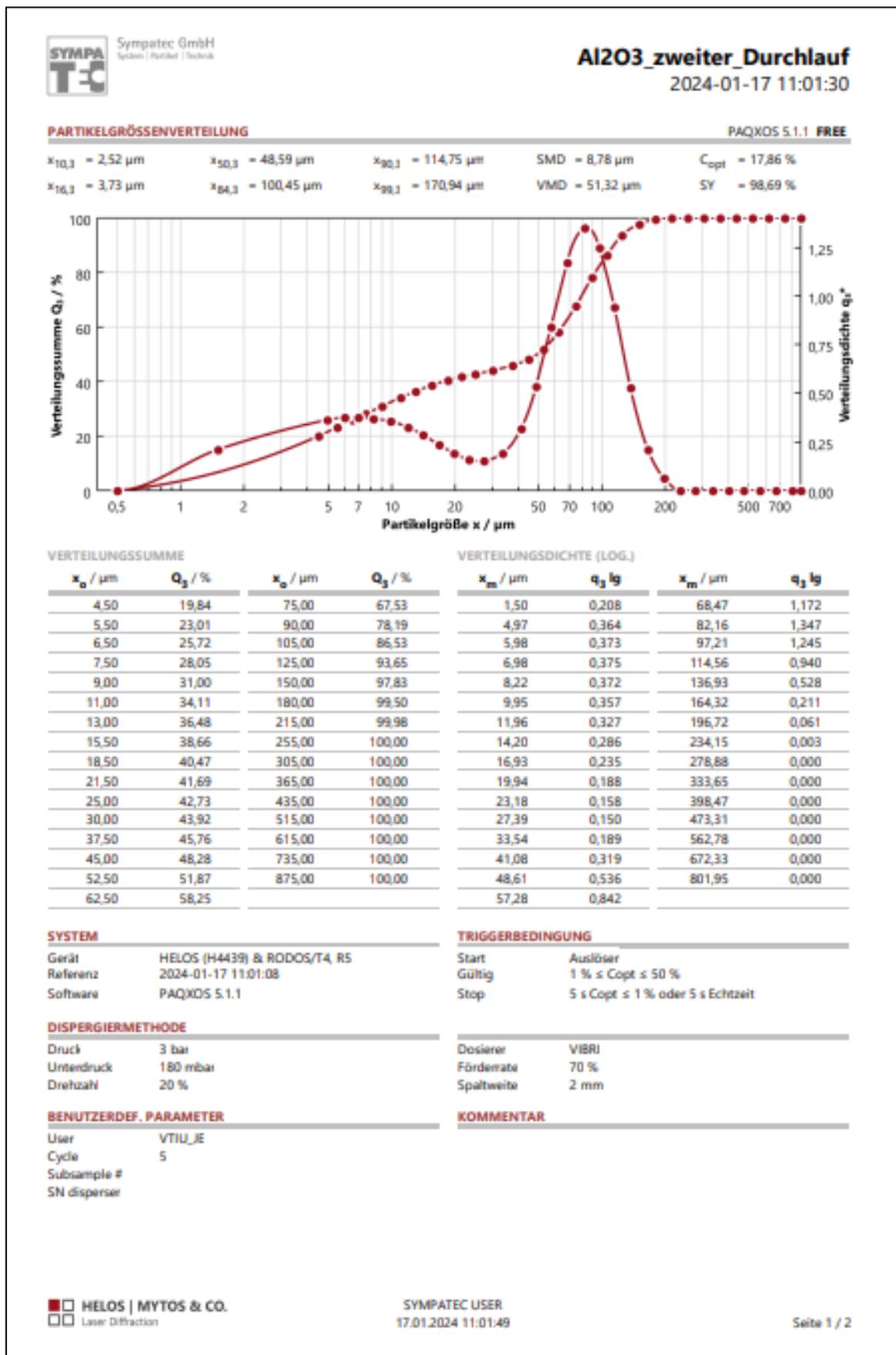


Abbildung 66: Ergebnis der Korngrößenanalyse der Aluminiumoxid-Reinprobe mittels HELOS nach zwei RODOS-Durchläufen

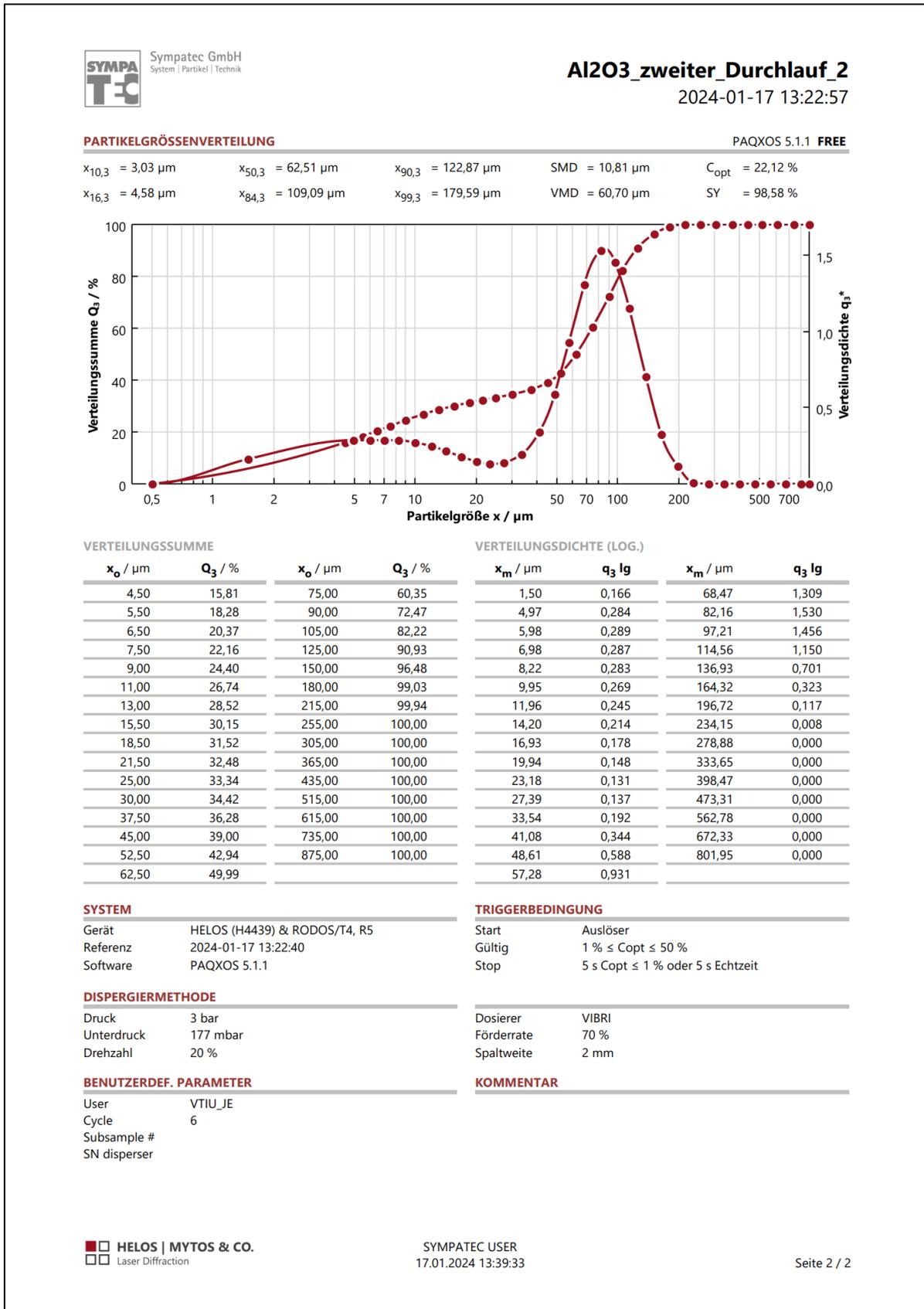


Abbildung 67: Ergebnis der wiederholten Korngrößenanalyse der Aluminiumoxid-Reinprobe mittels HELOS nach zwei RODOS-Durchläufen