

# Bestimmung der Geschwindigkeit und Größe von Partikeln in einer ICP-Plasmaquelle bei Atmosphärendruck

Inauguraldissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades  
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der  
Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Matthias Weiß

aus

Potsdam

Düsseldorf 2003

Gedruckt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen  
Fakultät der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf.

Referent: Prof. Dr. J. Uhlenbusch  
Korreferent: Prof. Dr. G. Pretzler

Tag der mündlichen Prüfung: 13. Juni 2003

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einführung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Das ICP Experiment</b>	<b>5</b>
2.1	Prinzip der Plasmaerzeugung . . . . .	5
2.1.1	Aufbau des ICP-Experiments . . . . .	5
2.1.2	Hochfrequenzgenerator . . . . .	7
2.1.3	Induktor . . . . .	7
2.1.4	Plasmabrenner . . . . .	10
2.1.5	Strömungsgeometrie der Plasmafackel . . . . .	11
2.1.6	Geometrie der Umkehrströmung . . . . .	13
2.2	Pulverförderung . . . . .	14
2.2.1	Methoden zur Einbringung von Trockenpulver . . .	14
2.2.2	Förderung von Flüssigkeiten . . . . .	16
<b>3</b>	<b>Diagnostik</b>	<b>21</b>
3.1	Streutheorie . . . . .	22
3.1.1	Berechnung der Streulichtintensität . . . . .	23
3.1.2	Vergleich von Streulichtintensität und Plasmaunter- grundstrahlung . . . . .	26
3.2	Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) . . . . .	34
3.2.1	Prinzip und Modell der LDA . . . . .	35
3.2.2	Experimenteller Aufbau und Signalauswertung der LDA . . . . .	37
3.3	Leuchtspurmethode . . . . .	46
3.3.1	Prinzip und experimenteller Aufbau . . . . .	46
3.3.2	Auswertung der Leuchtspurbilder . . . . .	48

<b>4</b>	<b>Modellierung</b>	<b>51</b>
4.1	Modellierung der Plasmaeigenschaften . . . . .	51
4.1.1	Ergebnisse der Plasmamodelle: Temperaturverteilung, Geschwindigkeitsverteilung und Dichten . . . . .	52
4.2	Modellierung des Partikelverhaltens . . . . .	55
4.2.1	Bestimmung der Partikeltrajektorien . . . . .	56
4.2.2	Bestimmung der Partikeltemperaturen . . . . .	56
4.2.3	Ergebnisse . . . . .	60
<b>5</b>	<b>Messung von Plasmakenngrößen</b>	<b>65</b>
5.1	Geschwindigkeitsverteilung im Plasma . . . . .	65
5.2	Vermessung des Rückwirbels . . . . .	72
5.3	Messung von Partikelgrößen im Plasma . . . . .	74
<b>6</b>	<b>Variation der Plasmaparameter</b>	<b>77</b>
6.1	Einfluß der Gasströmung und des Drucks . . . . .	78
6.1.1	Variation des Trägergasstroms . . . . .	78
6.1.2	Variation des Zentralgasstroms . . . . .	82
6.1.3	Variation des Mantelgasstroms . . . . .	84
6.1.4	Variation des Prozeßdrucks . . . . .	85
6.2	Einfluß von Leistung und Geometrie . . . . .	88
6.2.1	Variation der HF-Leistung . . . . .	88
6.2.2	Umkehrströmung . . . . .	90
6.3	Vergleich der Fördermethoden . . . . .	92
6.3.1	Fließbettförderer . . . . .	92
6.3.2	Aerosolgenerator . . . . .	95
6.3.3	Verneblersonde . . . . .	99
6.3.4	Hochdruckverneblung . . . . .	104
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>109</b>
	<b>Literatur</b>	<b>111</b>

# Kapitel 1

## Einführung

Partikel im Größenbereich unterhalb von 100 nm (Nanopartikel) und Schichten aus solchen Materialien sind aufgrund ihrer extremen elektrischen, chemischen und mechanischen Eigenschaften von wachsender Bedeutung für Anwendungen in der Werkstofftechnik bis hin zur Kosmetik [Sieg94],[Sieg97].

Zur Beschichtung werden routinemäßig (und vereinzelt auch zur Erzeugung von Nanomaterialien [Rao95]), dem Stand der Technik entsprechend, Plasmaquellen bei Atmosphärendruck betrieben, die fast ausschließlich auf dem Prinzip des Gleichstromplasmatröns beruhen. Hierbei wird zwischen zwei gekühlten Elektroden ein Lichtbogen erzeugt, dessen Plasma mittels des Arbeitsgases durch eine den technischen Erfordernissen angepaßte Düse auf das zu bearbeitende Werkstück geblasen wird. In das Plasma lassen sich in unterschiedlicher Weise Werkstoffe einbringen, die dort schmelzen und in Tröpfchenform auf dem Werkstück deponiert werden. Auch wenn Detailaspekte der Wechselwirkung zwischen Plasma und zu verarbeitenden Materialien sowie zwischen Plasma und Werkstück noch nicht vollkommen verstanden sind [Boul94], gilt die grundlegende Charakterisierung dieses Quellentyps als weitgehend abgeschlossen. Die Vorteile der atmosphärischen Gleichstromplasmatröns liegen in ihrer vergleichsweise leichten Handhabung, ihrer Zuverlässigkeit und in dem hohen Materialdurchsatz bei großer Effizienz. Nachteilig ist jedoch die hohe Strömungsgeschwindigkeit in Gleichstromplasmatröns, wodurch die Verweildauer des

eingebrachten Materials im Plasma kurz wird, so daß Prozesse, bei denen eine vollständige Verdampfung erforderlich ist, schwer zu realisieren sind. Ein weiterer Nachteil ist das Vorhandensein von Elektroden, was zur Verunreinigung des Plasmas oder damit hergestellter bzw. behandelter Produkte mit Elektrodenmaterial führen kann.

Eine Alternative zur Erzeugung von Plasmen bei Atmosphärendruck sind induktiv gekoppelte, hochfrequenzangeregte Plasmen (HF-Plasma oder ICP-Quelle: **I**nductively **C**oupled **P**lasma). Vorteile im Vergleich zu den herkömmlichen Gleichstromplasmatronen liegen in der Abwesenheit von Elektroden und in der um eine Größenordnung kleineren Strömungsgeschwindigkeit des Plasmas. Die letztgenannte Eigenschaft ermöglicht eine lange Verweildauer der ins Plasma eingebrachten Materialien, so daß über das Schmelzen von Partikeln hinaus auch Prozesse möglich werden, die eine vollständige Verdampfung fester oder flüssiger Ausgangsstoffe oder chemische Reaktionen dieser Stoffe miteinander oder mit Prozeßgasen erfordern.

Plasmaquellen mit induktiver Energieeinkopplung sind als Hilfsmittel zur Spektralanalyse in der Chemie weit verbreitet. Die auf diesem Gebiet verwendeten Quellen arbeiten mit Leistungen, die im Bereich um 2 kW liegen [Mont87]. Weitere Einsatzgebiete von ICP-Plasmen sind die Sphäroidisierung von Partikeln [Ishi91], die Erzeugung synthetischer Diamantschichten [Owan93] und die Herstellung von Spritzschichten [Take88],[Jian95], die beispielsweise zur thermischen Dämmung oder zur Erzeugung von supraleitenden Oberflächen [Mich96] Verwendung finden. In den letzten Jahren wird auch die Anwendung bei der Behandlung radioaktiver und giftiger Abfälle diskutiert [Blut96]. Der Arbeitsdruck bekannter Anlagen bewegt sich in der Regel im atmosphärennahen Bereich, d.h. bei Drücken von 400 hPa, verhältnismäßig selten wird von Untersuchungen an Plasmen bei Atmosphärendruck berichtet [Okad89],[Ishi97]. Eine prozeßbedingte Frequenzanpassung, ein Gaswechsel oder starke Laständerungen führten in nicht verstandener Weise zu Instabilitäten und Unsymmetrien im Plasma. Grundsätzlich ist zwar die Plasmaerzeugung in induktiv gekoppelten Plasmaquelle der hier diskutierten Art verstanden, der Stand des Wissens erlaubte es jedoch nicht, die beobachteten technischen Phänomene in befriedigender Weise zu erklären, zu steuern und kontrolliert zu nutzen.

Ein inzwischen abgeschlossenes Forschungsvorhaben des Bundesministeriums für Bildung und Forschung [BMBF02],[Info01], in das die Ergebnisse

der hier vorgestellten Arbeit eingegangen sind, hatte zum Ziel, mit einem thermischen HF-Plasma Schichten bzw. Nanopartikel zu erzeugen, die eine vergleichbar hohe Qualität wie bei herkömmlichen Verfahren besitzen sollten. Gemäß der Zielsetzung war eine neuartige Plasmaquelle verfügbar zu machen, die einen großvolumigen, wenigstens einige Zentimeter im Durchmesser einnehmenden Plasmastrahl mit im Kernbereich geringen radialen Gradienten erzeugt. Im Interesse einer intensiven Wechselwirkung zwischen zugeführten Materialien und Plasma sind in dessen Kernbereich innerhalb der Plasmaquelle turbulente Bedingungen erwünscht. Am Plasmarand und im Plasmafreistrahl sollen dagegen laminare Strömungsbedingungen vorherrschen, um die Einwirbelung von Umgebungsgas gering zu halten und so eine lange ungestörte Wechselwirkungszeit zwischen Material und Plasma zu ermöglichen. Die Arbeiten an der Plasmaquelle wurden von der Entwicklung geeigneter Verfahren zu ihrer Qualifizierung und zur Prozeßkontrolle begleitet. Die Plasmaströmung, die Temperaturverteilung und das daraus resultierende Verdampfungsverhalten der zugeführten Ausgangsstoffe wurden durch Simulationsrechnungen dargestellt. Die Gültigkeit der gewonnenen Ergebnisse wurde mittels Laser-Doppler-Anemometrie, deren Ergebnisse in der vorliegenden Arbeit vorgestellt werden, und mit Hilfe abbildender emissionsspektroskopischer Verfahren [Schu03] überprüft.

Ziel der vorliegenden Arbeit war es im Rahmen des genannten Projektes Partikelgeschwindigkeiten experimentell und numerisch zu charakterisieren. Weiterhin soll das Verdampfen der eingebrachten Materialien mit Hilfe eines numerischen Modells und experimentell über die Kontrolle des Teilchenradius untersucht werden. Mit Hilfe dieser Hilfsmittel sollen auf theoretischer und experimenteller Basis Versuchsbedingungen der ICP-Quelle und der Pulverzufuhr gefunden werden, bei denen eine vollständige Verdampfung der eingebrachten Stoffe möglich ist.

Um die thermische HF-Plasmaquelle und die in ihr ablaufenden Prozesse eingehend verstehen zu können, wird diese mit verschiedenen Diagnosemethoden untersucht und eine Modellierung des Plasmazustands durchgeführt. Schwerpunkte sind die Messung der Partikelgeschwindigkeiten mit Hilfe von Laser-Doppler-Anemometrie, der Ausbau des Simulationsmodells und die Durchführung von Modellrechnungen sowie die Messung von gestreutem Laserlicht an unverdampften Partikeln mit Hilfe eines intensivierten CCD-Kamerasystems zur Geschwindigkeits- und Größenmessung.

Aus den Messungen kann die räumliche Geschwindigkeitsverteilung der unverdampften Teilchen in der HF-Plasmaquelle bestimmt werden. Anhand der Partikeltrajektorien sind Rückschlüsse auf das Verdampfungsverhalten der verwendeten Ausgangspulver bei bestimmten Betriebsbedingungen möglich.

Das beschriebene HF-Plasmaexperiment am Institut für Laser- und Plasmaphysik der Universität Düsseldorf wird im Hochfrequenzfeld einer Spule durch elektromagnetische Induktion erzeugt. Das thermische Plasma hat die Herstellung von ultrafeinen Pulvern und Kompositpulvern mit Partikeln im Nanometerbereich zum Ziel. Das Herstellungsverfahren beruht auf folgendem Prinzip: grobes Pulver mit Partikelgrößen im  $\mu\text{m}$ -Bereich wird in das Plasma gebracht und verdampft darin. Durch anschließendes schnelles Abkühlen, das durch Zugabe von Kaltgas realisiert wird, entstehen aus dem Dampf Teilchen mit Partikelgrößen im nm-Bereich. Das erzeugte ultrafeine Endprodukt kann zu Materialien verdichtet werden, die starke Änderungen der physikalischen Eigenschaften – wie etwa Steigerung der Härte oder Änderung der elektrischen und magnetischen Eigenschaften – aufweisen. Ein Kompositmaterial aus ultrafeinem Nickel und Zirkondioxid ist zum Beispiel als Beschichtungsmaterial für die Anoden von Brennstoffzellen (SOFC: **S**olid **O**xide **F**uel **C**ell) vorgesehen. Bei diesem Pulverherstellungsprozeß sollen die eingebrachten Teilchen möglichst vollständig verdampfen, damit das produzierte Pulver eine homogene Teilchengröße besitzt. Dies erfordert eine genaue Kenntnis der Plasmaeigenschaften und der Plasma-Partikel-Wechselwirkung. Die Geschwindigkeit und Größe der eingebrachten Pulverpartikel ist hierbei ein wichtiger Parameter [Buch01], da die Verweildauer im Plasma und der Wärmeübertrag vom Plasma auf die Partikel durch die Geschwindigkeit bestimmt werden. Die Verdampfung wird durch Ausgangsmaterialien mit kleinen Korngrößen gefördert. In der vorliegenden Arbeit folgt der Darstellung des experimentellen Aufbaus des Plasmareaktors (Kapitel 2) eine Beschreibung der eingesetzten Diagnostik und ein Abschnitt zur Streutheorie (Kapitel 3). Daran anschließend wird das Syntheseplasma (insbesondere die eingebrachten Partikel) mit Hilfe von numerischer Modellierung (Kapitel 4) und Streulichtmessungen (Kapitel 5) studiert. In Kapitel 6 wird der Einfluß der Plasmaparameter auf die Partikelverdampfung untersucht und die verschiedenen Fördermethoden verglichen. Abschließend werden die neu gewonnenen Erkenntnisse in Kapitel 7 zusammengefaßt.



# Kapitel 2

## Das ICP Experiment

### 2.1 Prinzip der Plasmaerzeugung

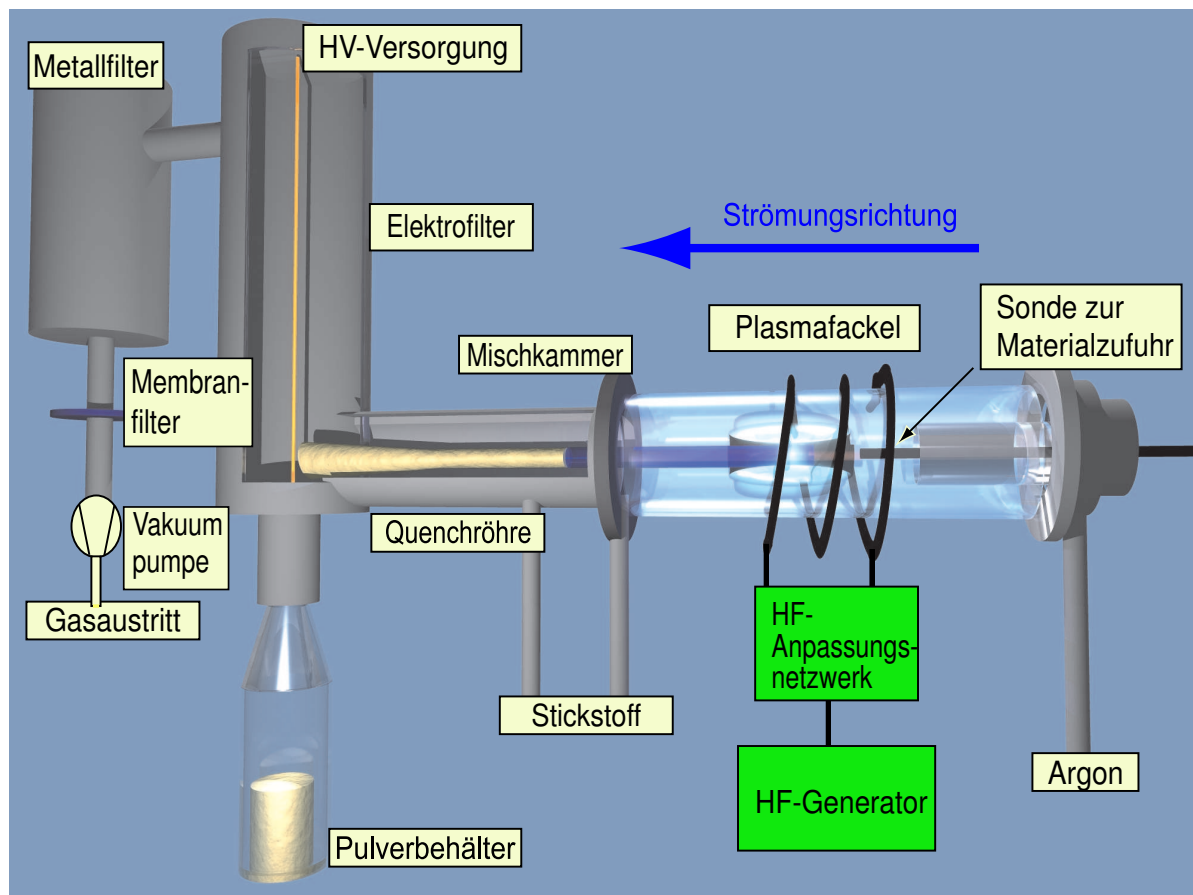
Der hier verwendete Reaktor zur Erzeugung eines thermischen HF-Plasmas zur Produktion von nm-Partikeln wird insbesondere in den Arbeiten von BUCHNER [Buch98] und SCHUBERT [Schu97] ausführlich beschrieben. Mit einem derartig induktiv gekoppelten Argon-Plasma lassen sich Ausgangssubstanzen (kommerziell erhältliche Metall- und Keramikpulver mit Größen im  $\mu\text{m}$ -Bereich) aufschmelzen und (abhängig vom Ausgangsmaterial mehr oder weniger) verdampfen. Nach dem Verdampfungsprozeß wird in der Kühlstufe (Mischkammer und Quenchröhre) durch Zugabe von Kaltgas die sich an die Nukleation der Partikel anschließende Wachstumsphase verkürzt, so daß Teilchen im nm-Größenbereich entstehen. Im folgenden wird der realisierte Reaktor vorgestellt und insbesondere auf die Schwierigkeiten mit Materialien mit hohen Schmelz- und Siedetemperaturen (wie dem in der Arbeit verwendeten Zirkoniumdioxid,  $\text{ZrO}_2$ ) eingegangen.

#### 2.1.1 Aufbau des ICP-Experiments

Abbildung 2.1 zeigt eine schematische Übersicht über das Experiment. Die wichtigsten Komponenten des Aufbaus sind die Plasmaerzeugung und Pulverförderung. Bei dem in der vorliegenden Arbeit gewählten Aufbau wird das Syntheseplasma über eine Induktionsspule (drei Windungen)

durch einen Hochfrequenzgenerator (Firma Steremat, modifiziertes Modell GI35/03 K) mit Energie versorgt. Koaxial im Inneren der Induktionsspule befindet sich ein Quarzrohr, in dem das Plasma brennt. Das Quarzrohr ist Teil eines Plasmabrenners, der sogenannten Plasmafackel (plasma torch). Als Arbeitsgas dient strömendes Argon.

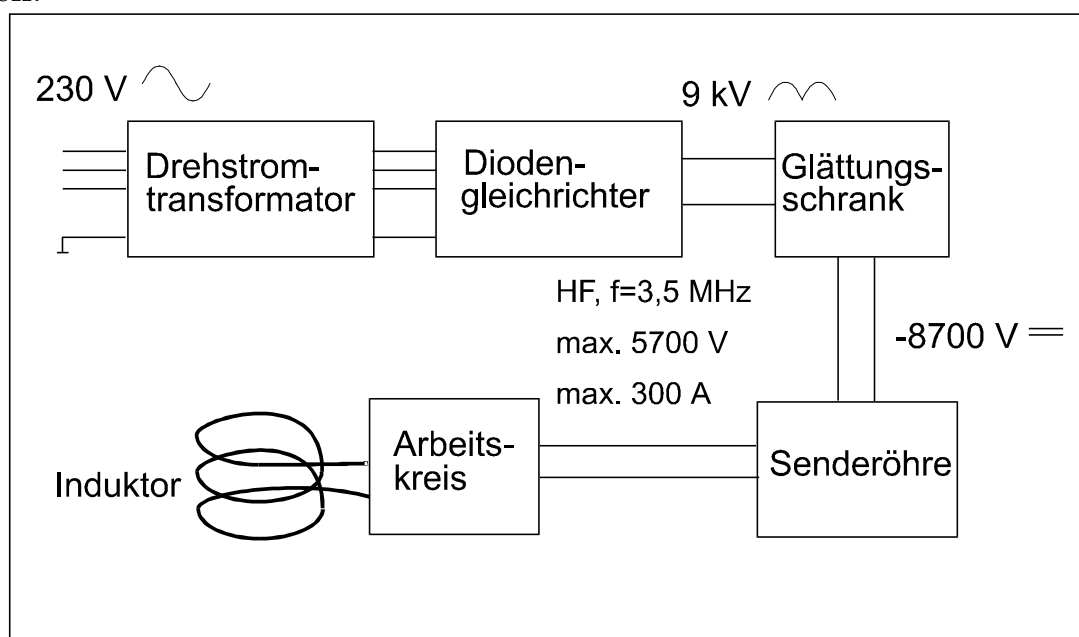
Die flüssigen oder festen Ausgangsmaterialien werden über eine Sonde in das Plasma injiziert und darin auf Grund der hohen Temperaturen von bis zu 10.000 K so stark aufgeheizt, daß sie schmelzen und abhängig von den Materialeigenschaften teilweise bzw. vollständig verdampfen. In der Mischkammer und der Quenchröhre erfolgt eine schnelle Abkühlung der Partikel. Dies verkürzt die Wachstumsphase der Teilchen, so daß Nanopartikel entstehen können. Das so erzeugte Nanopulver wird in einem nachgeschalteten mehrstufigen Filtersystem abgeschieden und das gereinigte Gas über eine Drehschieberpumpe abgesaugt.



**Abbildung 2.1:** Experimenteller Aufbau: Schematische Darstellung der Anlage zur Nanopartikelproduktion mit Hilfe einer ICP-Entladung.

## 2.1.2 Hochfrequenzgenerator

In der Analytik werden zum Betrieb von HF-Entladungen kleine Geräte eingesetzt, die mit hohen HF-Frequenzen (bis ca. 100 MHz) und niedrigen Leistungen (bis ca. 1 kW) arbeiten. Die HF-Leistung wird dabei meist mit Halbleitergeneratoren erzeugt. Für die Anwendung als Plasmareaktor kommen Röhrengeneratoren mit niedrigen Frequenzen (typisch einige 100 kHz bis ca. 10 MHz) und Leistungen von 5 bis über 100 kW zum Einsatz. Für die hier beschriebene Anwendung wurde ein freischwingender Röhrengenerator mit einer Frequenz von ca. 3,5 MHz und einer maximalen HF-Ausgangsleistung von 35 kW gewählt, der den Hochfrequenzstrom in der Induktionsspule erzeugt. Der HF-Generator ist durch ein Anpassungsnetzwerk, den sogenannten Arbeitskreis, mit der Induktionsspule verbunden. Eine schematische Darstellung des Generators wird in Abbildung 2.2 gegeben, eine genauere Beschreibung der HF-Erzeugung ist in [Ferf95] zu finden.



**Abbildung 2.2:** Schematischer Aufbau des Hochfrequenzgenerators.

## 2.1.3 Induktor

Als Induktor kommt eine wassergekühlte Kupferspule mit drei Windungen zum Einsatz. Da die Geometrie des Magnetfeldes einen Einfluß auf die Form und Stabilität des Plasmas hat, wird das statische Magnetfeld im

folgenden berechnet und mit Hilfe einer Hall-Sonde vermessen. Das Magnetfeld wird als Überlagerung des Feldes von drei Ringleitern mit einem Radius von  $R_{\text{Sp}}$  durch die ein Strom  $I$  fließt mit Hilfe des Gesetzes von BIOT-SAVART in [Jack83] simuliert. Das Magnetfeld in axialer  $z$ -Richtung kann in Zylinderkoordinaten  $(z, \theta, r)$  wie folgt berechnet werden:

$$B_z(r, z) = \sum_{i=1}^3 \frac{\mu_0}{4\pi} I \cdot R_{\text{Sp}} \int_0^{2\pi} \frac{(R_{\text{Sp}} - r \sin \theta)}{\varrho_i^3} d\theta \quad (2.1)$$

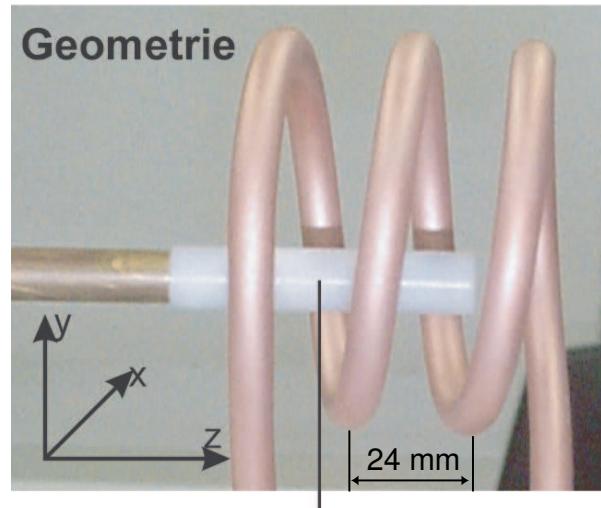
mit

$$\varrho_i = \sqrt{r^2 + R_{\text{Sp}}^2 + (z - z_i)^2 - 2 r R_{\text{Sp}} \sin \theta} \quad (2.2)$$

für die Leiterschleifen  $i = 1, 2, 3$  an den Positionen  $z_i$  und  $\mu_0$  der Induktionskonstante.

Das berechnete Ergebnis für einen Stromfluß von  $I = 20 \text{ A}$  bei einem Spulendurchmesser von  $R_{\text{Sp}} = 33 \text{ mm}$  und einem Abstand der Windungen von  $24 \text{ mm}$  ist im oberen Teil von Abbildung 2.4 dargestellt, wobei im rechten Teil zusätzlich das Magnetfeld der Zuleitungen (als gerade Leiter) mit hinzu genommen wurde.

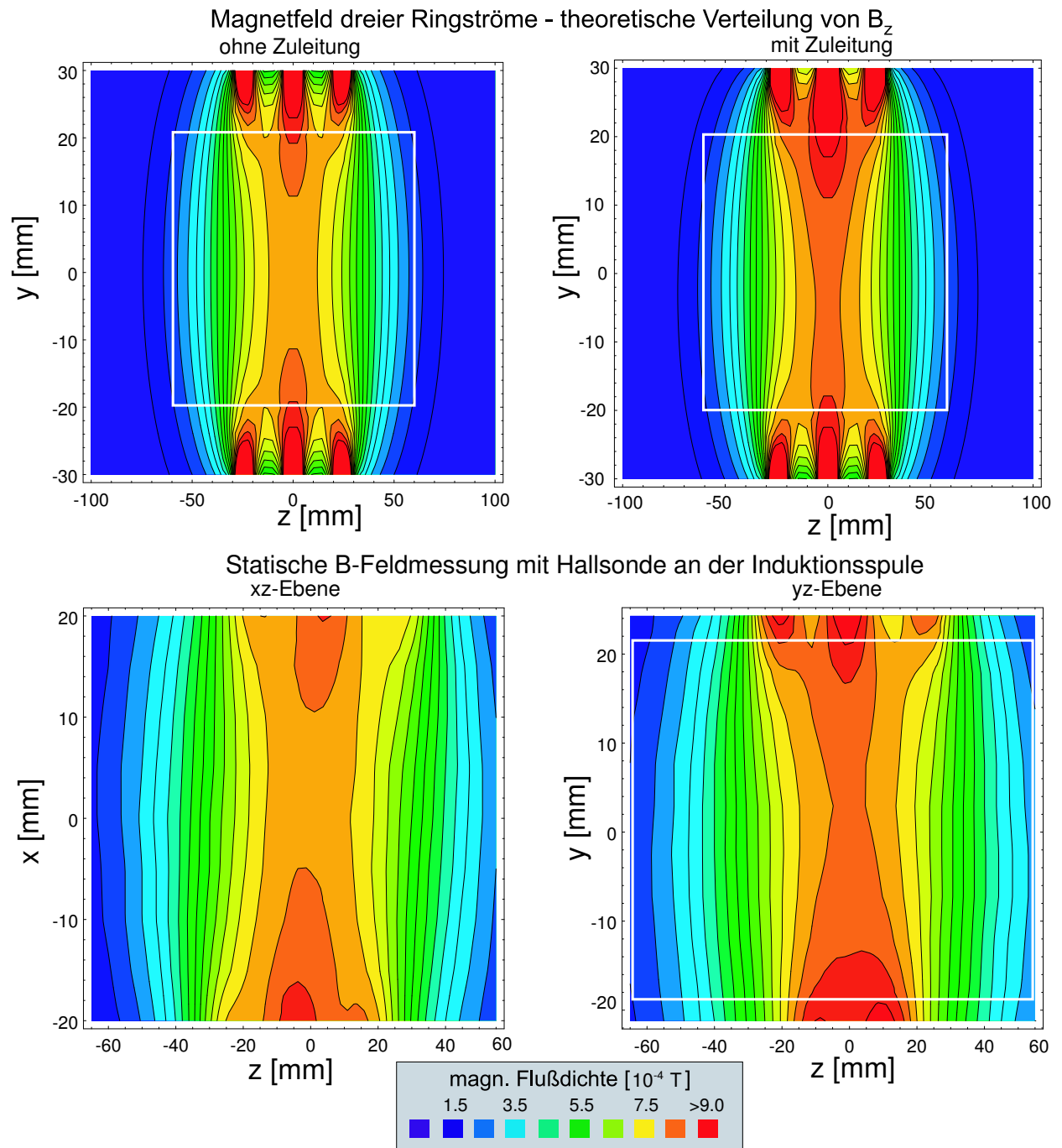
Das statische Magnetfeld beträgt dort im Zentrum bis zu  $8,5 \cdot 10^{-4} \text{ T}$ . Im unteren Teil der Abbildung 2.4 ist das mit Hilfe einer Hall-Sonde vermessene Magnetfeld dieser Spule dargestellt (die Geometrie des Aufbaus zur Magnetfeldmessung findet sich in Abbildung 2.3). Es zeigt sich, daß die absoluten Magnetfeldstärken identisch sind, wobei das gemessene Feld leicht asymmetrisch ist. In der  $y$ - $z$ -Ebene ist die Magnetfeld-erhöhung durch die Zuleitungen erkennbar, was einen Unterschied von  $0,5 \cdot 10^{-4} \text{ T}$  im Spulenzentrum ausmacht. Anhand dieser Spulengeometrie ist es möglich ein Plasma zu erzeugen, das symmetrisch und stabil betrieben werden kann.



Schutzrohr mit Hall-Sensor  
(Sensorgröße  $0,3 \times 0,3 \text{ mm}$ )

**Abbildung 2.3:** Induktionsspule: Geometrie und Aufbau zur Vermessung des statischen Magnetfeldes der Induktorspule mit Hilfe einer Hall-Sonde).

Die Erzeugung des HF-Plasmas unter Verwendung der vorgestellten Spule ist Gegenstand des nächsten Abschnitts.



**Abbildung 2.4:** Modellierung (oben) und Vermessung (unten) des statischen Magnetfeldes für 3 Ringströme ( $I = 20$  A, z-Positionen der Windungen: -24 mm, 0, +24 mm; Spulenradius  $R_{Sp} = 33$  mm).

### 2.1.4 Plasmabrenner

Ein induktiv gekoppeltes Plasma kann annähernd als ein Hochfrequenztransformator angesehen werden. Die Primärseite ist in diesem Fall die zylindrische Spule und das elektrisch leitende Plasma im Innern der Spule entspricht einer einzelnen Leiterschleife, die kurzgeschlossen ist und die Sekundärseite darstellt. Eine Energieübertragung vom wechselnden Magnetfeld auf das Gas erfordert das Vorhandensein eines geschlossenen Leiters, so daß ein Strom durch die Wechselfeldspannung induziert werden kann. Zur Zündung sind verschiedene Methoden denkbar [Ecke74]. Bei größeren Plasmen (wie auch im vorgestellten Experiment) erfolgt die Zündung in der Regel mit Hilfe eines Wolframdrahtes. Wird der Draht in Richtung des Spulenzentrum bewegt, bilden sich filamentartige Bögen aus. Ein Übergang zur induktiven Kopplung wird durch die azimuthale Komponente des einströmenden Gases gewährleistet, da so geschlossene Leiterschleifen geformt werden. Nach der Zündung wird der Wolframdraht wieder aus dem Spulenzentrum entfernt.

Zur Erzeugung von induktiv gekoppelten thermischen Plasmen wurden zahlreiche Konstruktionen entwickelt [Boul85]. Die Unterschiede liegen dabei bei der Wahl des Entladungsrohrdurchmessers, der Induktorgeometrie, des Rohrmaterials, des Kühlmediums, der Zahl und Form der Gasströmungen, der Betriebsgase sowie hinsichtlich der Möglichkeiten zur Einbringung von Reaktanden. Der in Abbildung 2.1 und 2.5 dargestellte Brenner ist nach folgenden Gesichtspunkten konstruiert: der zu wählende Durchmesser des Entladungsröhres ist von der Frequenz des HF-Generators abhängig, da der optimale Plasmadurchmesser  $2r_{\text{P1}}$  mit der Skintiefe  $\delta$  skaliert, die von der Generatorfrequenz  $f$  abhängt:

$$\delta = \sqrt{\frac{1}{\pi\mu_0\sigma f}}. \quad (2.3)$$

Dabei bezeichnet  $\sigma$  die mittlere elektrische Leitfähigkeit des Plasmas,  $\mu_0$  die Induktionskonstante, die näherungsweise der des Vakuums gleichgesetzt wird [Boul85]. Bei einem Kopplungsparameter  $\kappa = \sqrt{2} \cdot r_{\text{P1}}/\delta$  von 3 bis 4 wird nach BOULOS [Boul85] eine maximale Kopplungseffizienz erreicht. Für ein Argonplasma bei ca. 9000 K mit  $\sigma = 1800 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$  und einer Generatorfrequenz von  $f = 3,5 \text{ MHz}$  ergibt sich eine Skintiefe von  $\delta = 6,3 \text{ mm}$  und damit ein idealer Plasmadurchmesser  $2r_{\text{P1}}$  von 27 bis

36 mm. Für das Entladungsrohr wurde ein etwas größerer Innendurchmesser von 45,6 mm gewählt, um eine Isolationsschicht aus vergleichsweise kaltem Argon-Gas zwischen dem Plasma und der Wand des Entladungsrohres zu ermöglichen. Durch diese Maßnahme wird auch die Deposition von Material auf der Wand unterbunden und optische Diagnostik ist möglich.

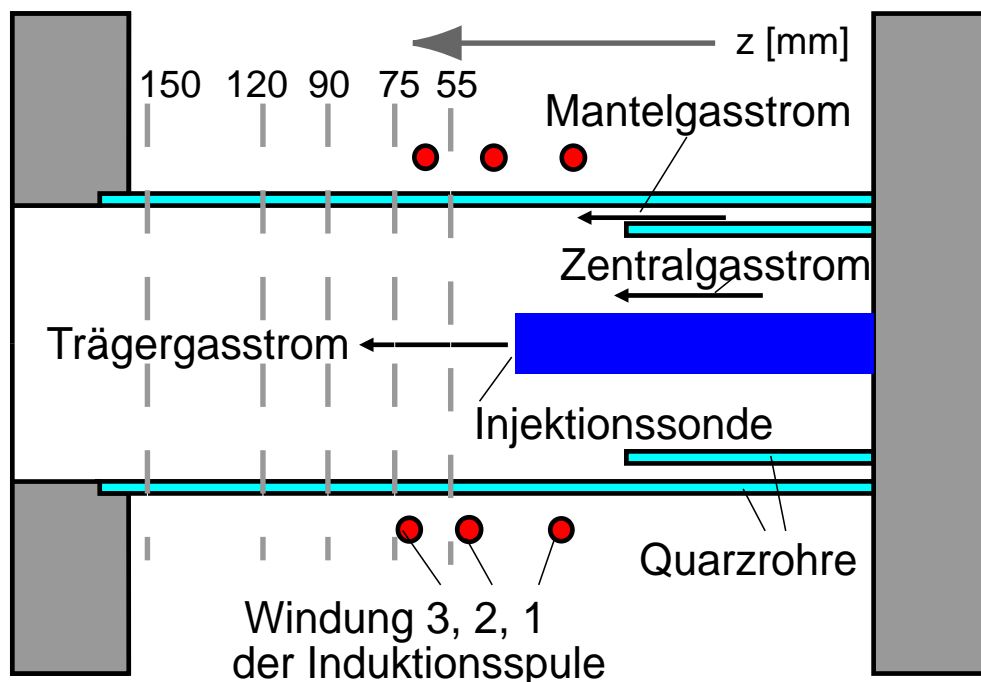
Neben den gebräuchlichen Entladungsrohren aus Quarz kommen insbesondere im kommerziellen Bereich alternative Materialien zum Einsatz, beispielsweise kann hierbei Siliziumnitrid verwendet werden [Boul92]. In Los Alamos wurde ein Brenner entwickelt, dessen Entladungsrohr aus wassergekühlten Kupfer-Schlitzwänden besteht, die von einem Quarzrohr umgeben sind [Holl83]. Beide Konzepte haben für die Untersuchung des Syntheseprozesses den gravierenden Nachteil, daß sie nicht transparent und damit für optische Diagnosemethoden ungeeignet sind. Daher wurde Quarz als Material für das Entladungsrohr gewählt.

Als Kühlmedium für den Plasmabrenner kann beispielsweise Wasser oder Preßluft [Boul85],[Step93] eingesetzt werden. Wasser bietet auf Grund der höheren Wärmekapazität und Wärmeleitung eine effektivere Kühlung als Luft, ist aber dennoch nicht so sinnvoll wie die Preßluftkühlung, da die Luftströmung eventuell vorhandene ionisierte Luft zwischen den Spulenwindungen entfernt und somit die Durchschlagsgefahr zwischen den Windungen verringert. Neben der einfacheren Konstruktion liegt ein Vorteil im besseren Zugang für optische Diagnostik, die durch einen Wassermantel behindert würde (Reflexion, Absorption und Linsenwirkung). Ein Verzicht auf einen innerhalb des Induktors liegenden Kühlwasserkanal ermöglicht zudem ein günstigeres Größenverhältnis zwischen Plasma- und Spulenradius, was wiederum die Kopplungseffizienz erhöht [Boul85].

### 2.1.5 Strömungsgeometrie der Plasmafackel

Der Plasmabrenner wird mit drei Gasströmen betrieben (Abbildung 2.5), von denen zwei für den Plasmabetrieb und einer zur Einbringung der Ausgangsmaterialien verwendet wird. Der größte Anteil des dem Brenner zugeführten Argon-Gases ist, mit einem Gasstrom von 50-120 slm (Standardliter pro Minute), die Mantelgasströmung, die zur thermischen Isolation zwischen heißer Plasmazone und Wandbereich beiträgt. Diese Strömung wird mit einer Azimuthalkomponente versehen, die stabilisierend auf das Plasma wirkt und das Zünden des Plasmas erleichtert. Sie

wird im Experiment durch eine Neigung der Gaseinlaßbohrungen von  $60^\circ$  gegen die Plasmaachse erzeugt. Weiter innen wird die zweite Strömung, die sogenannte Zentralströmung oder Plasmaströmung, axial eingebracht und durch ein kleines inneres Quarzrohr vom Mantelgas getrennt. Der Gasfluß beträgt dabei typischerweise 0-15 slm. Die dritte Strömung, der Trägergasstrom für die ins Plasma einzubringenden Partikel, wird durch eine wassergekühlte Sonde zentral ins Plasma injiziert. Diese ist sowohl axial als auch bezüglich ihrer Neigung zur Plasmaachse justierbar und wird bis in die Mitte der Induktorspule gebracht, um die am Plasmaeingang auftretende Rückströmung zu überwinden. Die im Experiment verwendete Sonde hat einen Innendurchmesser von 2 mm, einen Außendurchmesser von 10 mm und besteht aus einer doppelwandigen Konstruktion (wie schematisch in Abbildung 2.10 dargestellt), durch die eine Wasserkühlung der Sonde möglich ist. Das Wasser umströmt mit einem Druck von 15 bar den inneren Sondenmantel. Mit eingestellten Trägergasmengen von 2-5 slm wird eine ausreichende Anfangsgeschwindigkeit der Teilchen erreicht, so daß sich ein Injektionskanal für die eingebrachten Partikel bildet.



**Abbildung 2.5:** Plasmafackel und Strömungsführung: Gasflüsse und typische axiale Meßpositionen.



### 2.1.6 Geometrie der Umkehrströmung

Mit Hinblick zur Verbesserung der Partikelverdampfung des hochschmelzenden Zirkoniumdioxidpulvers ( $ZrO_2$ ) wurde neben der im Abschnitt 2.1.5 beschriebenen Strömungsanordnung zusätzlich mit der sogenannten Umkehrströmung eine neuartige Geometrie der Gasführung verwendet. Dabei wird das Mantelgas nicht vom Kopf der Plasmafackel aus (rechts in den Abbildungen 2.5 und 2.6), sondern ringförmig um den Plasmaausgang entgegen der normalen Strömungsrichtung eingeblasen (von links in Abbildung 2.6). Die Strömung kehrt im Spulenbereich um und fließt durch die Mitte wieder zurück. Das Plasma wird hier also nur noch mit einem Gasstrom betrieben. Damit wird erreicht, daß das Trägergas, welches weiterhin vom Fackelkopf her eingeblasen wird, den bei der Vorwärtsströmung vorhandenen Einlaufwirbel nicht mehr überwinden muß. Das Einblasen des kalten Gases von dort, wo das Entladungsrohr bei Vorwärtsströmung am heißesten wird, soll zusätzlich die Wandkühlung verbessern. Ein stabiler Plasmabetrieb ist bei (Mantel)-Gasströmen von 50-80 slm möglich. Bei niedrigeren Gasströmen erreicht das Plasma die Wand, bei höheren Strömen wird die Strömung instabil.

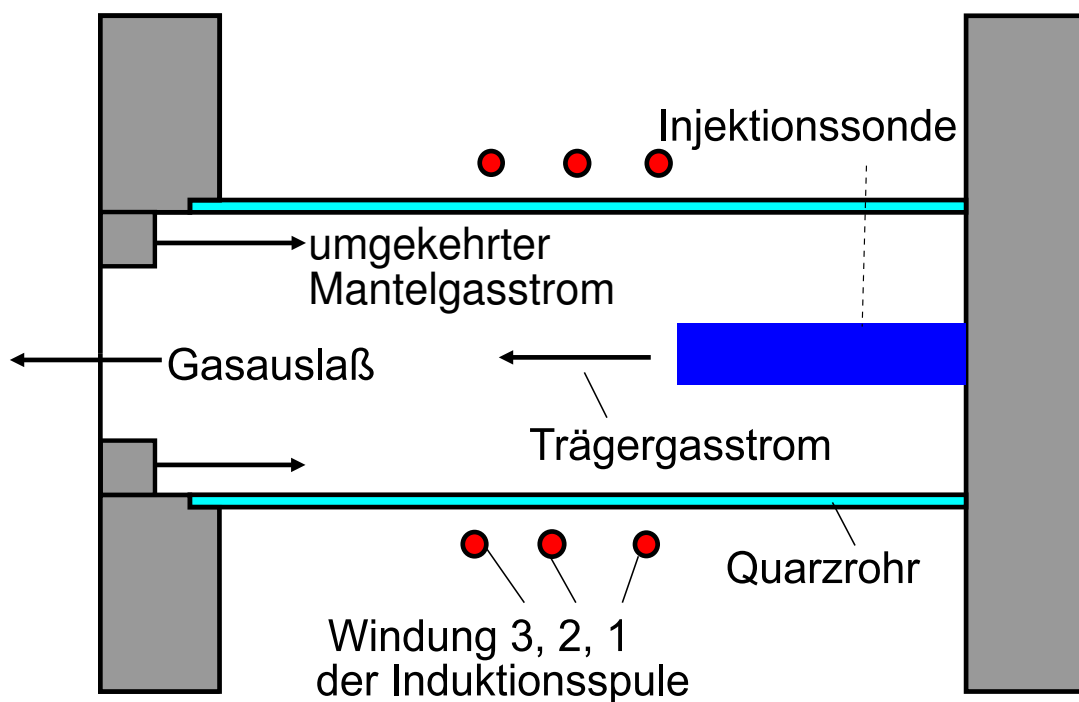


Abbildung 2.6: Gasflüsse bei Umkehrströmung.

## 2.2 Pulverförderung

### 2.2.1 Methoden zur Einbringung von Trockenpulver

Um die in fester Form vorliegenden Ausgangsmaterialien ins Plasma einzubringen, werden verschiedene Arten von Pulverförderern eingesetzt. Als Fördersysteme kam dabei ein kommerziell erhältlicher Scheibenförderer der Firma Metco und ein nach Plänen der Firmen Tekna und Siemens im Rahmen eines Forschungsverbundes im Institut gebauten und weiterentwickelten Fließbettförderer zum Einsatz. Die Aufbauten und konzeptionelle Vor- und Nachteile werden im folgenden vorgestellt.

#### Scheibenförderer

Der Scheibenförderer wird bei der Durchführung der hier beschriebenen Experimente häufig verwendet.

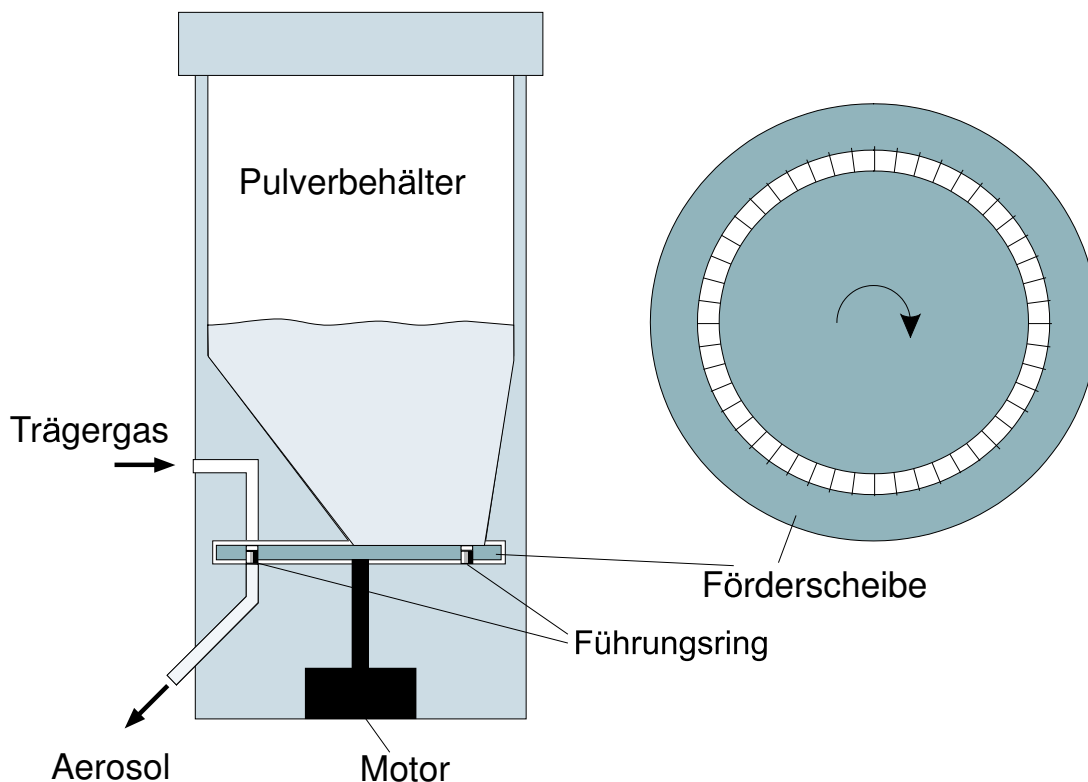


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau des verwendeten Scheibenförderers.

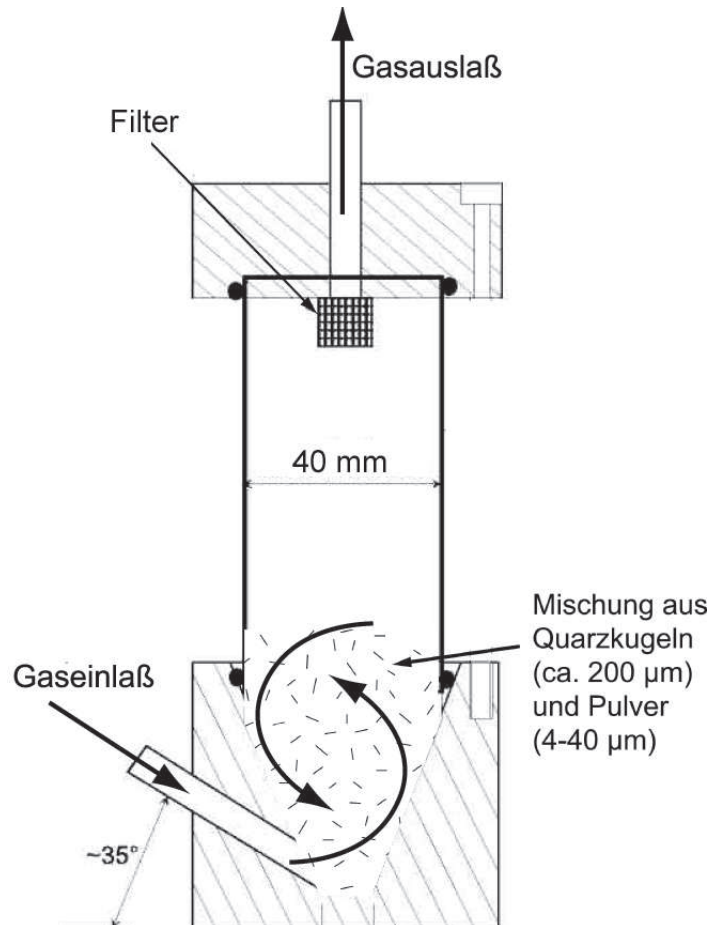
Bei diesem fällt das zu fördernde Pulver aus einem Vorratsbehälter in die Rille einer rotierenden Förderscheibe (siehe Abbildung 2.7). Die Rieselfähigkeit der Ausgangsmaterialien wird durch einen Preßluftvibrator

verbessert. Die Rille der Förderscheibe ist in 90 Kammern unterteilt, in denen das Pulver durch Drehung der Scheibe, über einen Führungsring gleitend, transportiert wird. Ein Trägergasstrom bläst das Pulver durch eine Bohrung im Führungsring in den Pulverschlauch, der den Partikelstrom dem Plasmabrenner zuführt. Die Geometrie der Förderrille und die Rotationsgeschwindigkeit der Scheibe bestimmen das geförderte Pulvervolumen. Bei einem Trägergasstrom von 3 bis 10 slm und Partikelgrößen von 5 - 50  $\mu\text{m}$  können mit diesem Verfahren Förderraten von 0,5 - 1,6 g/min erzielt werden. Nachteil dieses Förderverfahrens ist die ungleichmäßige Förderung des Pulvers. Ursachen dafür liegen darin, daß Pulverpartikel im Zuleitungsschlauch haften bleiben und so den Partikelstrom behindern. Durch den kontinuierlichen Gasstrom werden diese wieder unkontrolliert abgelöst und führen somit zu einer Schwankung in der Förderrate. Die Zufuhr von neuem Pulver ist mit der rotierenden Scheibe ebenfalls unregelmäßig, da die Pulverfüllung in den Kammern schwankt, da sich auch hier im Laufe des Betriebs Pulver absetzt und somit die Kammergröße verkleinert und diese teilweise sogar vollständig verstopft. Eine Messung zur Förderstabilität findet sich in [Will98].

### **Fließbettförderer**

Zur Verbesserung der zeitlichen Konstanz und wegen der Möglichkeit, auch feinere Ausgangsmaterialien (Partikelgrößen von  $< 1 - 10 \mu\text{m}$ ) als mit dem Scheibenförderer möglich einzubringen, kommt der Fließbettförderer zum Einsatz. Das Pulver befindet sich hier in einem Gefäß zusammen mit einer Mischung aus Glas- bzw. Kupferkugeln mit einem mittleren Durchmesser von 25 - 200  $\mu\text{m}$  (je nach verwendeten Filtern, siehe Abbildung 2.8). Der Aufbau beruht dabei auf dem Prinzip eines von der Firma Tekna vertriebenen Homogenisierers für Pulveraerosole, der soweit modifiziert und im Rahmen der Experimente neu gebaut wurde, daß er unseren Anforderungen bezüglich eines gleichmäßigen Transports und eines Betriebs mit kleinen Partikeln, gerecht wurde. Das Gas strömt schräg nach unten ein und verwirbelt beim Durchgang die Mischung aus Pulver und Kugeln. Dadurch werden Pulveragglomerate zerstört und ein homogenes Pulveraerosol erzeugt. Ein an der Decke des Förderers befindlicher Filter hält die Kügelchen aus Glas oder Kupfer zurück, so daß diese im Gefäß verbleiben und vom Fördermaterial getrennt werden. Zusätzlich wird das Gefäß

durch eine Vorrichtung mechanisch gerüttelt, so daß sich Pulverreste von Filter und Wand lösen und nach unten fallen. Die Förderrate des Pulvers liegt bei einem eingestellten Trägergasstrom von typischerweise 1,5 slm bei 0,17 g/min mit einer Schwankung von 5 - 10%.



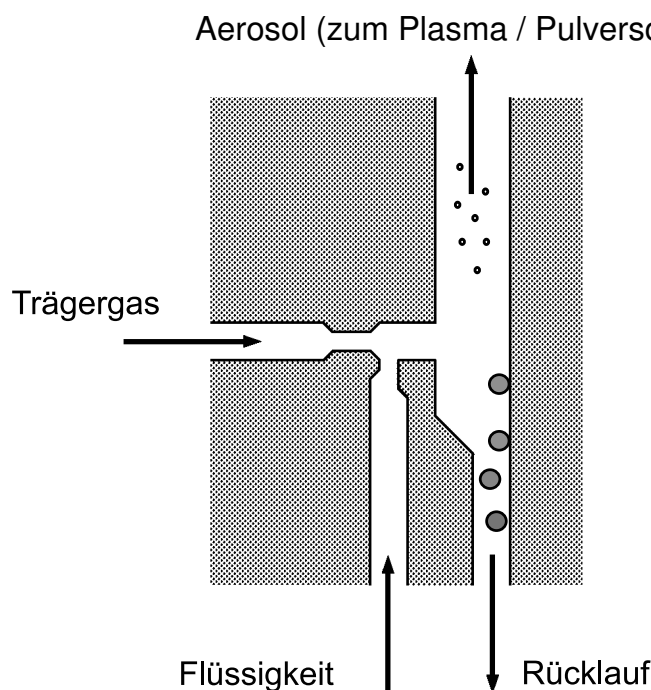
**Abbildung 2.8:** Fließbettförderer: Schematischer Aufbau und Prinzip.

## 2.2.2 Förderung von Flüssigkeiten

Die Förderung von Flüssigkeiten, mit besonderen Augenmerk auf Lösungen und Suspensionen, ermöglicht andere Methoden der Materialeinbringung. Die drei im Rahmen der Untersuchung wichtigsten Systeme sind der Aerosolgenerator (mit geringen Förderraten und sehr feinem Tröpfchennebel), die Verneblersonde (mit verhältnismäßig hohen Förderraten) und die Hochdruckverneblung, bei der – im Gegensatz zu den beiden anderen Systemen – auf ein Trägergas, welches das Aerosol transportiert bzw. für die Vernebelung sorgt, vollständig verzichtet wird.

### Externer Vernebler (Aerosolgenerator)

Beim externen Vernebler bzw. Aerosolgenerator (Abbildung 2.9) wird das Trägergas über eine Verengung des Leitungsquerschnitts durch eine dünne Bohrung (Durchmesser etwa 0,5 mm) auf hohe Geschwindigkeiten gebracht.

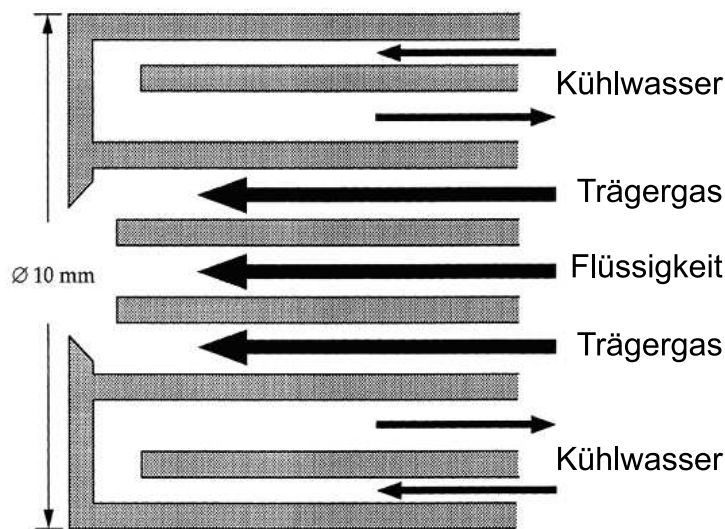


**Abbildung 2.9:** Aerosolgenerator: Schematischer Aufbau und Prinzip.

Dieser schnelle Gasstrom direkt hinter der Bohrung sorgt für einen statischen Unterdruck, so daß die Flüssigkeit (z.B. Suspension oder Lösung) durch die Zuleitung aus dem Vorratsbehälter angesaugt wird. Diese wird dann, wenn sie in den Gasstrom gerät, vernebelt. Dieses Prinzip gleicht dem einer Saugstrahlpumpe. Die vernebelte Flüssigkeit trifft anschließend auf eine Wand, wo sich bevorzugt die großen Tropfen sammeln, die nicht vom Gasstrom weiter transportiert werden, sondern auf Grund der Schwerkraft in eine Rückleitung zum Vorratsgefäß fallen. Die feinen Tröpfchen (kleiner als  $10\ \mu\text{m}$ ) hingegen werden weiter vom Gasstrom mittransportiert und können über einen Schlauch dem Plasma zugeführt werden. Die Förderrate dieser Anordnung ist mit 2-10 ml/h ( $\leq 0,1\ \text{ml/min}$ ) sehr klein, was für technische Anwendungen ungenügend ist, für analytischen Zwecke aber ausreicht.

## Verneblersonde

Zur Erhöhung der mit dem externen Vernebler erzielbaren Förderleistungen kam ein vergleichsweise direktes Verneblersystem zum Einsatz, bei dem die Vernebelung der Flüssigkeit direkt am Ausgang der Sondenspitze erfolgt. Das System der in Abbildung 2.10 vorgestellten (koaxialgeströmten) Verneblersonde entspricht in der Wirkungsweise dem einer Airbrush-Pistole und wurde gemeinsam mit Willeé [Will98] am Institut entwickelt und getestet.

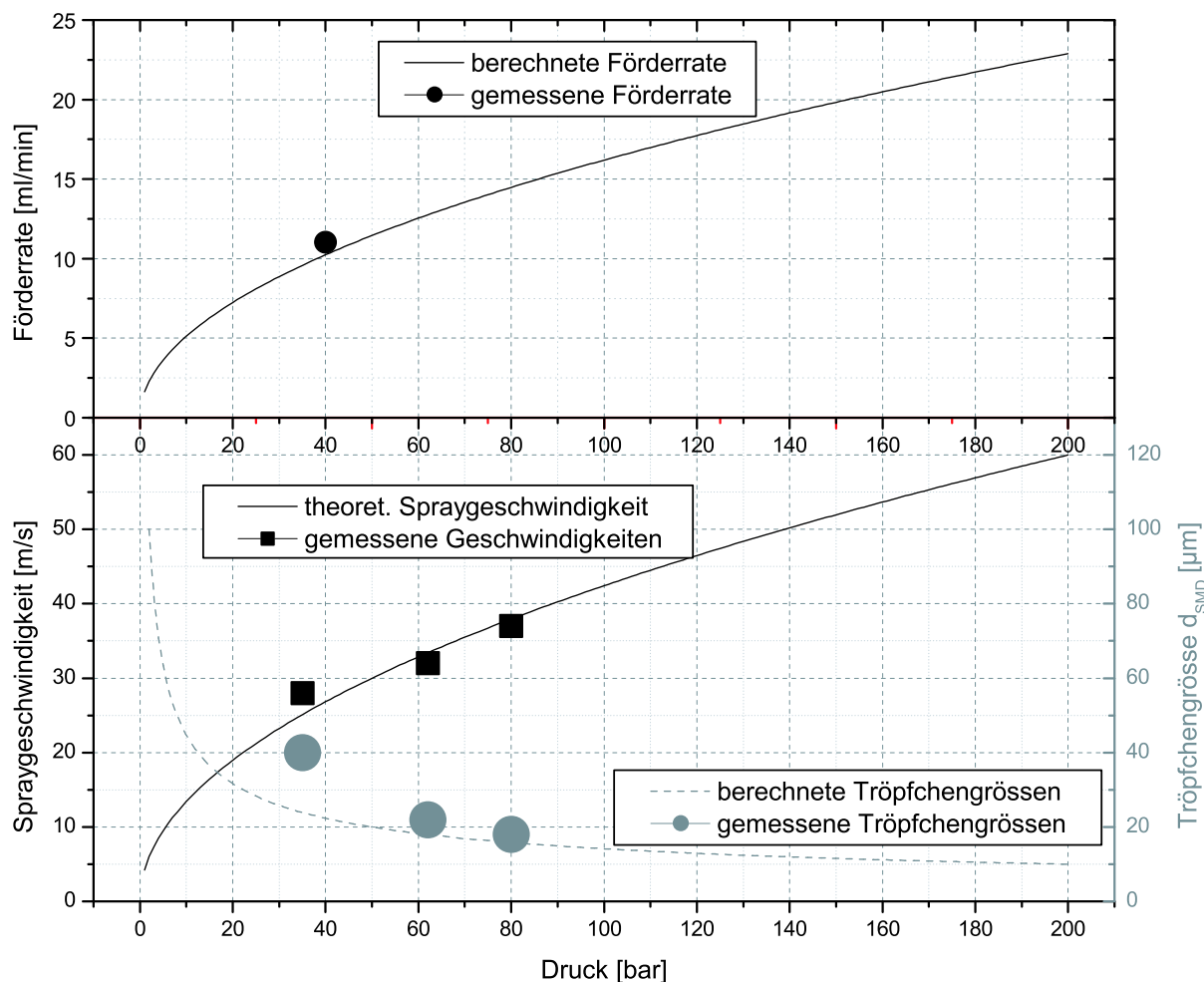


**Abbildung 2.10:** Längsschnitt durch die Spitze der Verneblersonde.

Die Flüssigkeit wird hier mit leichtem Überdruck in die Sonde gebracht, wo sie in einem inneren Rohr bis zur Sondenspitze gelangt. Das Trägergas wird außerhalb des Suspensionsrohrs transportiert und trifft erst in einem kleinen Hohlraum an der Sondenspitze auf die Flüssigkeit. Eine Ringblende (mit einem typischen Durchmesser von 1 mm) am Düsenausgang sorgt dafür, daß es dort auf Grund der starken Scherkräfte zu einer Vernebelung kommt.

Bei diesem Verfahren können Flüssigkeits-Förderraten von bis zu 20 ml/min mit Tröpfchengrößen im Bereich von 20  $\mu\text{m}$  erzielt werden. Kritisch ist hierbei der Transport zur Sondenspitze, bei dem sich keine Gasbläschen bilden dürfen, da dies zu einem instabilen Förderverhalten führt. Über eine zweite Flasche und einen Druckausgleich können vorhandene Luftbläschen entfernt werden. Eine Skizze dieses Aufbaus findet sich in [Will98].

## Hochdruckverneblung

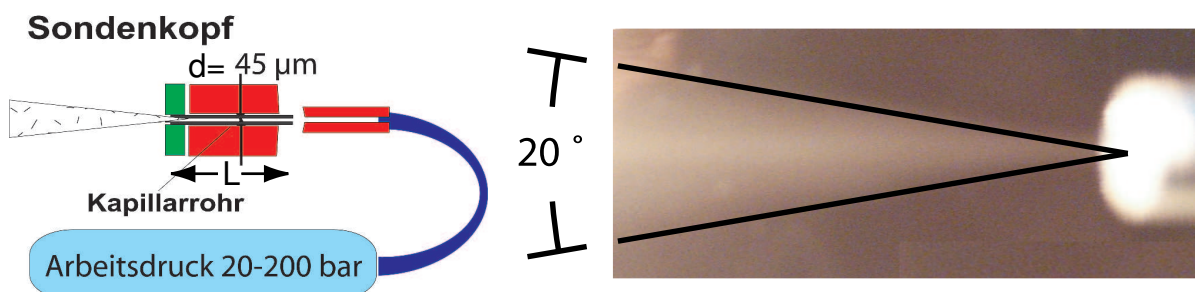


**Abbildung 2.11:** Hochdruckverneblung: Theoretische Abhängigkeit der Partikelgröße, Spraygeschwindigkeit und Fördermenge vom Flüssigkeitsdruck nach LEFEBVRE [Lefe89] und Vergleich mit Meßpunkten aus Abbildung 6.29 (Kapillarlänge:  $L = 7$  mm, Durchmesser:  $d = 45$   $\mu\text{m}$ , Flüssigkeit: Wasser; die Größe der Punkte symbolisiert die Meßunsicherheiten).

Die Grundidee der Hochdruckverneblung ist, daß durch das direkte Einspritzen der flüssigen oder suspendierten Ausgangsstoffe in das Plasma im Vergleich zu den anderen Methoden kein kaltes Trägergas benötigt wird. Die Verdampfung sollte dadurch merklich gefördert werden, da im Zentralbereich im Vergleich mit Methoden bei denen das Trägergas einen kalten Kanal hervorruft, höhere Temperaturen vorherrschen. Schaut man sich die nach der Theorie zu erwartenden Teilchengrößen und Fördermengen, die nur vom Flüssigkeitsdruck, der Kapillarlänge und der Düsenöffnung abhängen, in Abbildung 2.11 an, so ist das Potential dieser Fördermetho-

de erkennbar. Bei fester Düsengröße steigen mit Erhöhung des Flüssigkeitsdruckes die geförderte Flüssigkeitsmenge und die Tröpfchengeschwindigkeit bei gleichzeitig sinkenden Tröpfchenradien. Beispielsweise ist bei einem Druck von 60 bar, einer Kapillarlänge von  $L = 7$  mm und einem Kapillarinne Durchmesser von  $d = 45$   $\mu\text{m}$  die theoretische Partikelgröße kleiner als 20  $\mu\text{m}$ , die Ausströmgeschwindigkeit 32 m/s und die geförderte Flüssigkeitsmenge entspricht 12 ml/min. Diese Werte sind im Bereich der technischen Möglichkeiten und versprechen kleine Tröpfchengrößen und vergleichsweise hohe Verweilzeiten, was jeweils die Verdampfung des eingebrachten Materials erleichtert, gleichzeitig wird eine verhältnismäßig große Flüssigkeitsmenge gefördert. In Abbildung 2.12 ist ein selbst entwickelter, entsprechend der theoretischen Vorgaben realisierter Aufbau schematisch dargestellt. Das System besteht aus einem Flüssigkeitsvorratsgefäß, einer Gasflasche, die an das Flüssigkeitssystem angeschlossen wird und Drücke von 20-200 bar ermöglicht und einem flexiblen Druckschlauch, der die unter Druck stehende Flüssigkeit zum Sondenkopf leitet, der die Kapillare hält. Abbildung 2.12 zeigt auf der rechten Seite ein typisches Bild des Aerosols, das mit dieser Anordnung hergestellt wurde. Der Öffnungswinkel des Spraykegels beträgt  $20^\circ$ . Dieser kleine Winkel erlaubt in gewissem Rahmen eine Ausrichtung des Partikelstrahls relativ zur Plasmalage. Im Experiment entleert sich bei 40 bar das Vorratsgefäß mit einem Volumen von 500 ml innerhalb von 45 Minuten vollständig, was Durchflußraten von 11 ml/min entspricht. Dieser Wert stimmt gut mit der berechneten Flußrate (siehe Abbildung 2.11) überein.

Mit der Leuchtspurmethode (siehe Abschnitt 3.3) wurden die Geschwindigkeiten und Tröpfchengrößen am Freistrah in Luft vermessen. Die Meßergebnisse und eine weiterführende Diskussion finden sich in Abschnitt 6.3.



**Abbildung 2.12:** Schematischer Aufbau (links) und Bild des Aerosolsprays (rechts) der Hochdruckverneblung.



# Kapitel 3

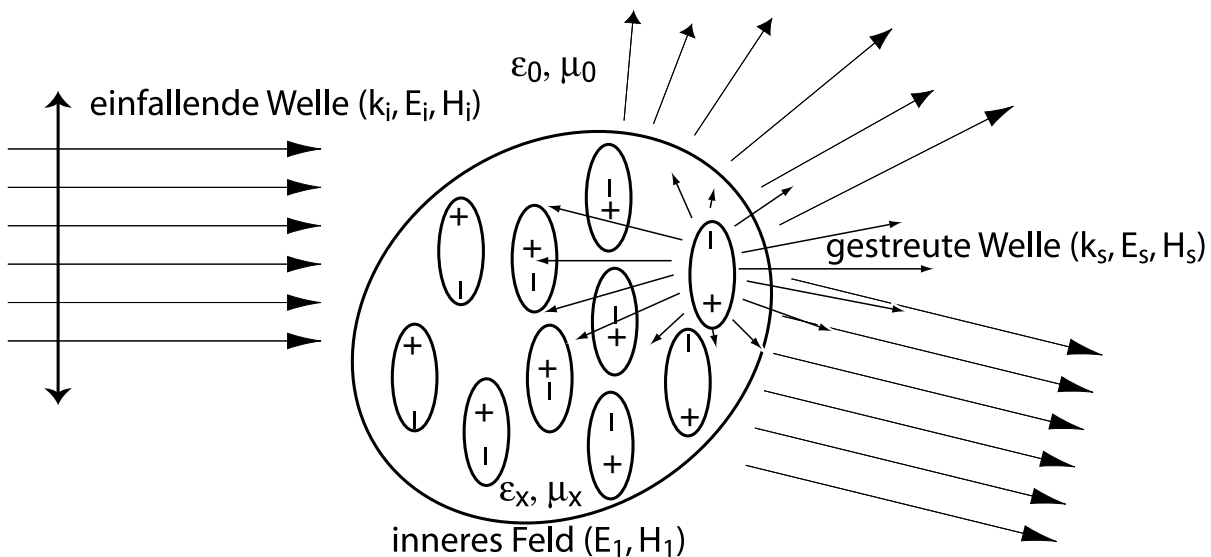
## Diagnostik

Schwerpunkt der experimentellen Untersuchung zur Bestimmung von Geschwindigkeiten, Trajektorien und Größen unverdampfter Partikel ist die Streuung von Laserlicht. Zwei unterschiedliche Methoden werden hierbei verwendet: Zum ersten werden Messungen mit Hilfe der Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) zur Bestimmung von Partikel-Geschwindigkeiten und -Anzahl durchgeführt. Dabei kreuzen sich zwei Laserstrahlen im Plasma. Teilchen, die sich durch das Meßvolumen bewegen, streuen das Laserlicht und dieses gestreute Licht wird ausgewertet. Zum zweiten werden Leuchtbilder zur Geschwindigkeits- und Größenbestimmung aufgenommen. Dabei werden verdampfte Partikel mit einem fokussierten Laserstrahl beleuchtet und das unter einem Winkel von  $90^\circ$  gestreute Licht ausgewertet. Theoretische Grundlage der beiden Streulichtexperimente ist die (Mie)-Streutheorie, die im folgenden zunächst kurz in ihren Grundzügen vorgestellt wird. Im Anschluß werden die beiden realisierten Meßverfahren diskutiert.

Als Lichtquelle dient in beiden Experimenten ein Argon-Ionen Laser, der bei einer Wellenlänge von 514,5 nm mit einer Ausgangsleistung von ca. 1,3 W betrieben wird. Der Laser ist ein wassergekühltes Modell der Firma Spectra Physics [Spec73]. Der Strahldurchmesser beträgt am Ausgang 1,5 mm bei einer sehr geringen Strahldivergenz von 0,5 mrad ( $0,028^\circ$ ).

### 3.1 Streutheorie

Bei der Beschreibung der Streutheorie kann zunächst von einem Atom ausgegangen werden. Wird das Atom mit einer elektromagnetischen Welle bestrahlt verhält es sich wie ein Dipol und schwingt mit der Frequenz des eingestrahlten Feldes und emittiert sekundäre Strahlung mit der selben Frequenz im wesentlichen in Vorwärts- und Rückrichtung. Dies ist die bekannte Rayleigh-Streuung mit dem charakteristischen anisotropen Streufeld (ähnlich der Darstellung links oben in Abbildung 3.3). Geht man nun zu größeren Teilchen mit mehreren Atomen über schwingen viele Dipole und deren Streufelder überlagern sich kohärent (siehe Abbildung 3.1). Die räumliche Verteilung des gestreuten Lichts wird durch die Eigenschaften (Form, Größe und Material) sowie die Absorption am Teilchen bestimmt. Es treten noch weitere besondere Effekte wie Abdunklung einzelner Bereiche durch destruktive Interferenz oder Brechung auf, aus denen ein komplizierter Verlauf des Streufeldes resultiert. Das gesamte Streufeld in einer Richtung ist die Überlagerung der einzelnen sekundären Wellenzüge, zwischen denen wegen der hohen Kohärenz des Laserlichts überall feste Phasenbeziehungen bestehen. Mit der Größe der Partikel erhöht sich die Anzahl der möglichen Interferenzen.



**Abbildung 3.1:** Streuung an einem beliebigen Teilchen sowie exemplarisch Streuung eines einzelnen Dipols: einfallendes Feld ( $k_i, E_i, H_i$ ), inneres Feld ( $E_1, H_1$ ) und Streufeld ( $k_s, E_s, H_s$ ) (in Abbildung 3.2 wird im folgenden beispielhaft eine berechnete Verteilung des elektrischen Feldes im Innern eines Partikels dargestellt).

Die Materialeigenschaften (Brechungsindex), die Frequenz sowie die Inten-

sität der eingestrahlten Welle bestimmen die Amplituden der induzierten Dipolmomente. Da das Streuproblem für Teilchen mit allgemeiner Gestalt nicht analytisch lösbar ist, nimmt man bei der Lösung des Streuproblems eine kugelförmige Form der Streuer an. Die durch MIE [Mie08] bekannte Lösung für das Streuproblem an kugelförmigen Teilchen wird *Mie-Theorie* genannt.

### 3.1.1 Berechnung der Streulichtintensität

Im folgenden Abschnitt werden zunächst die Formeln zur Berechnung von Streulichtintensitäten an sphärischen dielektrischen Teilchen vorgestellt. Eine ausführliche analytische Beschreibung des Streuproblems und die Übertragung auf nicht-sphärische sowie komplexe Partikel findet sich in BOHREN und HUFFMAN [Bohr83]. Zwischen einfallendem ( $E_i$ ) und gestreutem Feld ( $E_s$ ) besteht für die parallel bzw. senkrecht zur Streuebene liegende Komponente die Beziehung:

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{e^{ik(r-z)}}{-ikr} \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix}. \quad (3.1)$$

Hier gibt  $k$  die Wellenzahl der Streuwelle an (im äußeren Medium gilt:  $k = k_i = k_s$ ). Die Streumatrixelemente werden mit einer gleichmäßig konvergierenden Serienentwicklung berechnet:

$$\begin{aligned} S_1(\cos \theta) &= \sum_{n=1}^{n_c} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \pi_n + b_n \tau_n), \\ S_2(\cos \theta) &= \sum_{n=1}^{n_c} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \tau_n + b_n \pi_n), \end{aligned}$$

die nach  $n_c$  Termen (mit beliebig kleinem Fehler) abgebrochen werden kann, wobei  $\pi_n$  und  $\tau_n$  winkelabhängige Funktionen der Legendreschen Polynome erster Ordnung sind:

$$\pi_n(\theta) = \frac{P_n^1(\cos \theta)}{\sin \theta} \quad \text{und} \quad \tau_n(\theta) = \frac{dP_n^1(\cos \theta)}{d\theta} \quad \text{mit} \quad P_n^1 = -\frac{dP_n}{d\theta}.$$

Die Koeffizienten  $a_n$  und  $b_n$  ergeben sich jeweils aus den Übergangsbedingungen an den Grenzflächen zwischen den Streuteilchen und dem umge-

benden Medium. Für die Streufelder sind die Entwicklungskoeffizienten:

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{\mu m \psi_n(mx) \psi'_n(x) - \mu_1 \psi_n(x) \psi_n(mx)}{\mu m \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \mu_1 \xi_n(x) \psi'_n(mx)} \\ b_n &= \frac{\mu_1 \psi_n(mx) \psi'_n(x) - \mu \psi_n(x) \psi'_n(mx)}{\mu_1 \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \mu \xi_n(x) \psi'_n(mx)}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Der vom Partikelradius  $d/2$  abhängige Größenparameter  $x$ , der relative Brechungsindex  $m$  und die Riccati-Bessel-Funktionen  $\psi_n$  und  $\xi_n$  sind definiert als:

$$\begin{aligned} x &= \frac{kd}{2} = \frac{\pi n_m d}{\lambda}, \quad m = \frac{n_1}{n_m}, \\ \psi_n(\varrho) &= \varrho j_n(\varrho) \quad \text{und} \quad \xi_n(\varrho) = \varrho h_n^{(1)}(\varrho), \end{aligned} \quad (3.3)$$

mit den sphärischen Hankel-Funktionen (sphärische Bessel-Funktionen dritter Art)

$$h_n^{(1)}(\varrho) = j_n(\varrho) + iy_n(\varrho) \quad \text{und} \quad h_n^{(2)}(\varrho) = j_n(\varrho) - iy_n(\varrho), \quad (3.4)$$

die eine Linearkombination von sphärischen Bessel-Funktionen zweiter Art (Neumann-Funktionen) sind

$$j_n(\varrho) = \sqrt{\frac{\pi}{2\varrho}} J_{n+1/2}(\varrho) \quad \text{und} \quad y_n(\varrho) = \sqrt{\frac{\pi}{2\varrho}} Y_{n+1/2}(\varrho), \quad (3.5)$$

die selbst wiederum aus den Bessel-Funktionen erster Art  $J_{n+1/2}$  und zweiter Art  $Y_{n+1/2}$  abgeleitet werden können. Die gestrichelten Größen  $\psi'_n$  und  $\xi'_n$  sind die Ableitungen der Riccati-Bessel-Funktionen. Die vom Material abhängigen Parameter sind der Brechungsindex  $n_m$  und die Permeabilität  $\mu$  des äußeren Mediums sowie der Brechungsindex  $n_1$  und die Permeabilität  $\mu_1$  des Streuers. Zur einfacheren mathematischen Handhabung wird die harmonische Welle statt durch trigonometrische Funktionen als Exponentialfunktion dargestellt (wie in Gleichung 3.1), was zu komplexen Größen und über die Dispersionsrelation auch zu komplexen Brechungsindizes führt [Hech94]. Zur Darstellung einer realen Welle wird der Realteil der Wellengleichung gebildet. Die oben aufgeführten Brechungsindizes (und somit auch der Größenparameter  $x$ ) werden komplex betrachtet. Im allgemeinen Fall ist der (komplexe) Brechungsindex:

$$n_i = c\sqrt{\varepsilon_i \mu_i} = \sqrt{\frac{\varepsilon_i \mu_i}{\varepsilon_0 \mu_0}}, \quad (3.6)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum  $c$ . Aus den elektrischen Streufeldkomponenten können über den Betrag des Poyntingschen Vektors Streulichtintensitäten berechnet werden. Auf Grund der Winkelabhängigkeit der Streumatrixelemente  $S_1$  und  $S_2$  sind die relativen Intensitäten  $i_{\parallel}$  und  $i_{\perp}$  ebenfalls winkelabhängig, so daß sich bei einer Auftragung im Polar-*diagramm* die z.B. aus [Blum25] bekannten Strahlungsdiagramme kleiner Kügelchen ergeben, die im folgenden für Zirkondioxidpartikel berechnet werden (siehe Abbildung 3.3). Zur Beschreibung der Streuung müssen die Entwicklungskoeffizienten  $a_n$  und  $b_n$  zusammen mit den Winkelfunktionen  $\pi_n$  und  $\tau_n$  berechnet und daraus die Summe gebildet werden. DAVE [Dave69] benutzt in einem Programm eine Umformulierung der Koeffizienten  $a_n$  und  $b_n$ , die sich im Hinblick auf Rundungsfehler besser für Berechnungen mit dem Computer eignet:

$$a_n = \frac{\left[ \frac{D_n(mx)}{m} + \frac{n}{x} \right] \psi_n(x) - \psi_{n-1}(x)}{\left[ \frac{D_n(mx)}{m} + \frac{n}{x} \right] \xi_n(x) - \xi_{n-1}(x)} \quad (3.7)$$

$$b_n = \frac{\left[ mD_n(mx) + \frac{n}{x} \right] \psi_n(x) - \psi_{n-1}(x)}{\left[ mD_n(mx) + \frac{n}{x} \right] \xi_n(x) - \xi_{n-1}(x)}, \quad (3.8)$$

mit der von ADEN [Aden51] in die Mie-Theorie eingeführten logarithmischen Ableitung  $D_n(\varrho)$

$$D_n(\varrho) = \frac{d}{d\varrho} \ln \psi_n(\varrho) = \frac{\psi_n'(\varrho)}{\psi_n(\varrho)}, \quad (3.9)$$

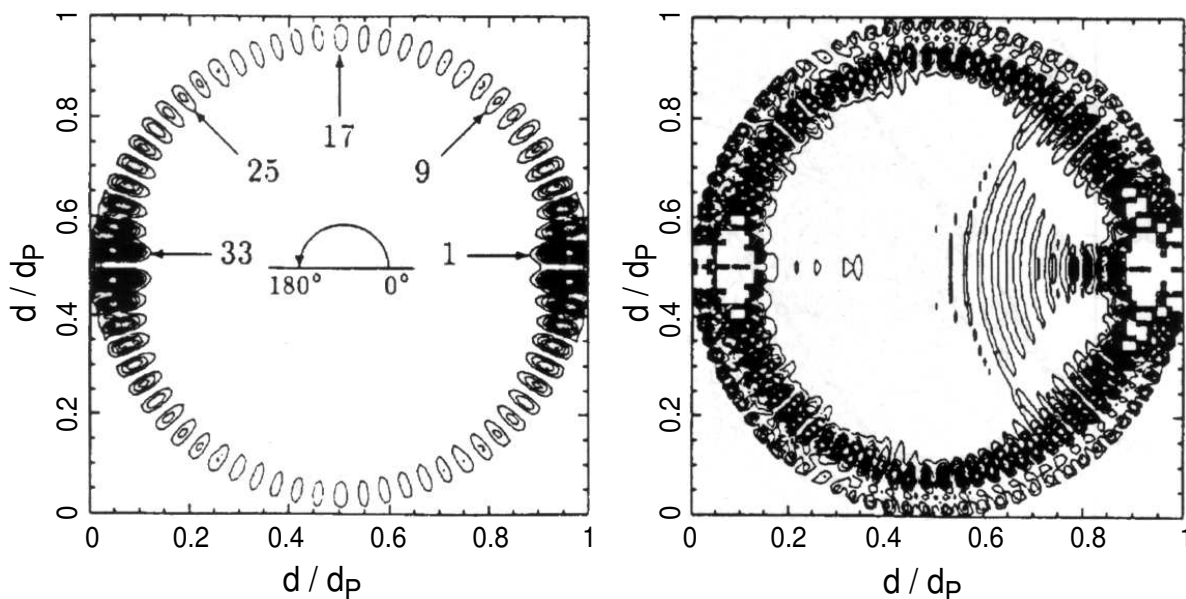
die dabei der Rekursionsvorschrift

$$D_{n-1}(\varrho) = \frac{n}{\varrho} - \frac{1}{D_n(\varrho) + \frac{n}{\varrho}} \quad (3.10)$$

folgt. Das im folgenden verwendete Programm von zur Berechnung der Streuparameter mit Hilfe der absteigenden Rekursion basiert auf dem in BOHREN [Bohr83], Appendix A vorgestellten Verfahren. Als Startwerte empfiehlt sich eine Wahl von  $n_x = n_c + 5$  Termen (d.h. es genügt mit mehr als weiteren 5 Termen, die zur Reihenkonvergenz  $n_c$  nötig sind zu rechnen) und  $D_{n_x}(\varrho) = 0$ .

Mit den Multipol-Koeffizienten  $a_n$  und  $b_n$  kann das äußere Feld berechnet werden. Analog dazu kann durch Bestimmung der Koeffizienten  $c_n$  und

$d_n$  mit Hilfe der Mie Theorie auch das innere Feld berechnet werden. Wie für die externen Felder gibt es in Abhängigkeit vom Größenparameter  $x$  Resonanzen. Im Innern des Partikels äußert sich dies in der Zahl und Stärke der Maxima. In Abbildung sind zwei berechnete Konturdiagramme des elektrischen Feldes für verschiedene Größenparameter  $x$  dargestellt. In der linken Abbildung ist eine Resonanz von 33 Maxima über einen Winkel von  $180^\circ$  und nur einem Ring dargestellt. Die rechte Seite zeigt eine Resonanz von 40 Maxima mit zwei Ringen, wobei der innere Ring höhere Intensitäten aufweist als der äußere. Die vorgestellten Ergebnisse sind den Arbeiten von KIEFER [Kief97] ,[Kief88] zu entnehmen.



**Abbildung 3.2:** Berechnetes (winkelgemitteltes) inneres elektrisches Feld in Abhängigkeit vom (normalisierten) Durchmesser ( $d/d_P$ ) [Kief97].

### 3.1.2 Vergleich von Streulichtintensität und Plasmauntergrundstrahlung

#### Berechnung der Streulichtintensitäten

Mit dem vorgestellten Programm zur Bestimmung der Streulichtparameter kann die Intensität des von den Partikeln im Plasma gestreuten Lichts ermittelt werden. Diese wird mit der Strahlung, die vom Plasma ausgeht, verglichen. Um eine absolute Vergleichsgröße zu haben, wird die Zahl der jeweils emittierten Photonen, die auf den Photomultiplier treffen, berechnet. Zunächst wird die Streuung des Laserlichts an den  $ZrO_2$ -Teilchen be-

trachtet. Die Zahl der gestreuten Photonen pro Zeit in den Raumwinkel  $\Delta\Omega$  ist durch:

$$\dot{N}_{\text{Photonen}} = \frac{\lambda}{hc} \Delta\Omega I_L \Delta V n \frac{dC_{\text{sca}}}{d\Omega} \quad (3.11)$$

gegeben, wobei die mittlere Laserleistung im Meßvolumen  $P_L = 0,4 \text{ W}$  beträgt, d.h. die Intensität ist  $I_L = 1,3 \cdot 10^7 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$  bei einem Strahlradius von etwa  $100 \mu\text{m}$ . Da  $\Delta V$  die Größe des Beobachtungsvolumens und  $n$  die Dichte der Streuer bezeichnet, gibt  $\Delta V n$  die Anzahl der Streuer  $N_{\text{Streuer}}$  im Meßvolumen an. Der differentielle Streuquerschnitt  $\frac{dC_{\text{sca}}}{d\Omega}$  (hier aus der Mie-Theorie) berechnet sich nach BOHREN [Bohr83] zu:

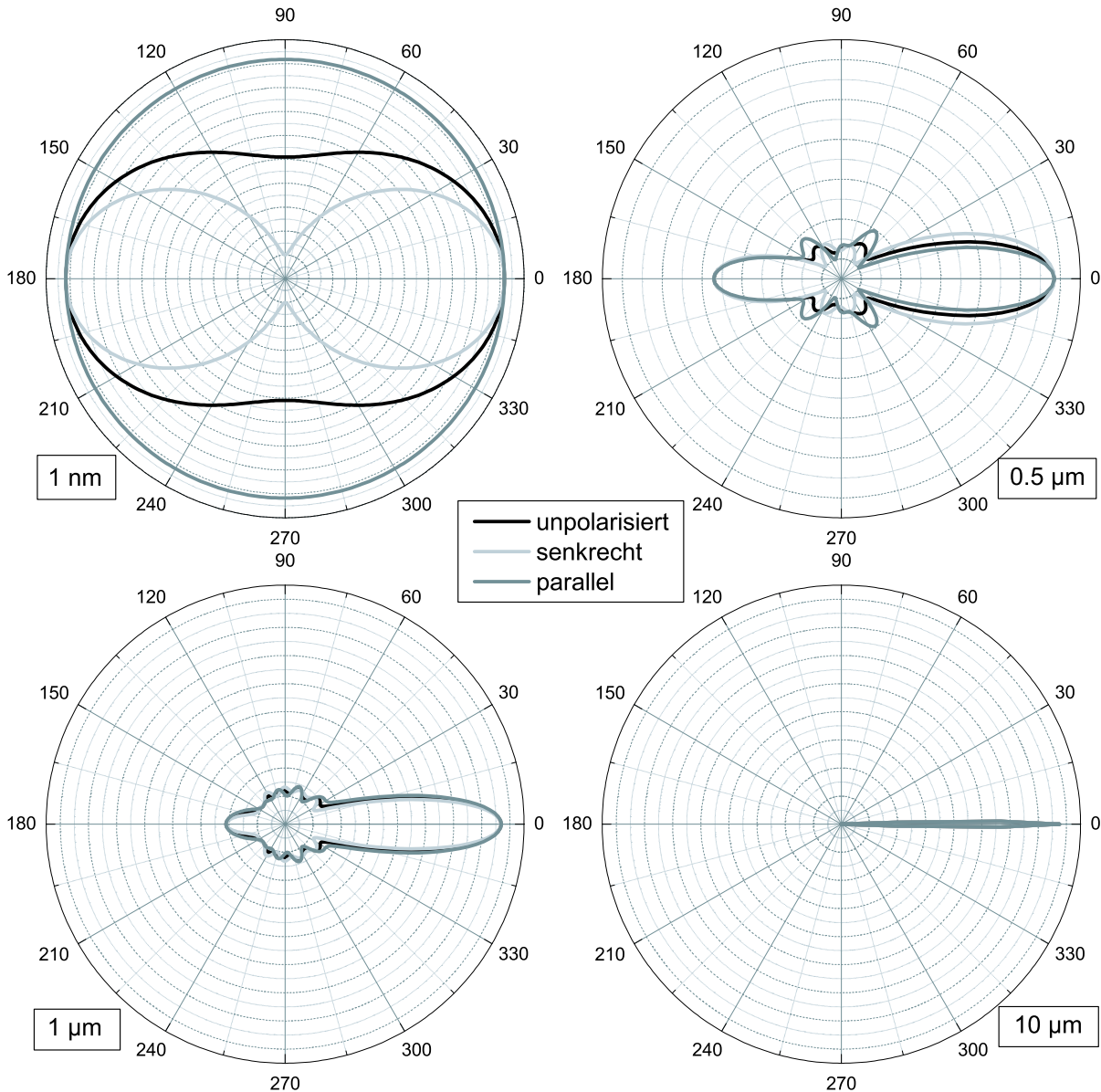
$$\frac{dC_{\text{sca}}}{d\Omega} = \frac{1}{k^2} |S_j|^2, \quad (3.12)$$

mit den Streumatrixelementen  $S_j(\cos\theta)$  für die verschiedenen Polarisierungen ( $j = 1$ : senkrecht,  $j = 2$ : parallel zur Streuebene) bezogen auf die einfallende (Laser) Strahlung. Gleichung 3.11 kann gültig für unseren Aufbau dargestellt werden als

$$\begin{aligned} \dot{N}_{\text{Photonen}} &= \frac{\lambda}{hc} \Delta\Omega I_L N_{\text{Streuer}} \frac{|S_1|^2}{k^2} \\ \dot{N}_{\text{Photonen}} &= 1,24 \cdot 10^9 \frac{\text{sr}}{\text{s}} |S_1|^2, \end{aligned} \quad (3.13)$$

bei einem Teilchen im Meßvolumen. Die Größe des Raumwinkels  $\Delta\Omega$  ist durch die Geometrie mit  $5,5 \cdot 10^{-3} \text{ sr}$  gegeben und die Wellenlänge beträgt  $\lambda = 514,5 \text{ nm}$ . Der Realteil des Brechungsindex  $n_1$  der Zirkondioxid ( $\text{ZrO}_2$ )-Partikel wird mit  $2,20$  angegeben [Kort50], den Imaginäranteil von  $0,01$  kann man den Arbeiten von LEE [Lee96] und CHO [Cho96] entnehmen. Der *komplexe* Brechungsindex  $n_1$  ist für die untersuchten Teilchen  $n_1 = 2,20 - 0,01i$ . Mit diesen Materialgrößen können die Streuparameter  $|S_1|^2$  und  $|S_2|^2$  mit Hilfe des vorgestellten Programms nach [Bohr83] in Abhängigkeit vom Partikelradius berechnet werden. Anhand des Strahlungsdiagramme in Abbildung 3.3 ist erkennbar, daß die Anzahl der Extrema in der Intensitätsverteilung mit dem Partikeldurchmesser  $d$  der Teilchen (also dem Größenparameter  $x$ ) zunimmt. Die Streulichtintensität ändert sich je nach betrachteter Polarisations Ebene. In den meisten Fällen ist die Streulichtintensität in Vorwärtsrichtung am größten. Je größer die Partikel werden umso größer wird der Anteil der Vorwärtstreuung gegenüber den anderen Streurichtungen (insbesondere auch der

Rückstreuung). Der Unterschied kann bis zu einem Faktor von  $10^5$  betragen. Die immer stärkere Asymmetrie bei steigendem Partikelradius zwischen Vorwärts- und Rückstreuung wird *Mie-Effekt* genannt.

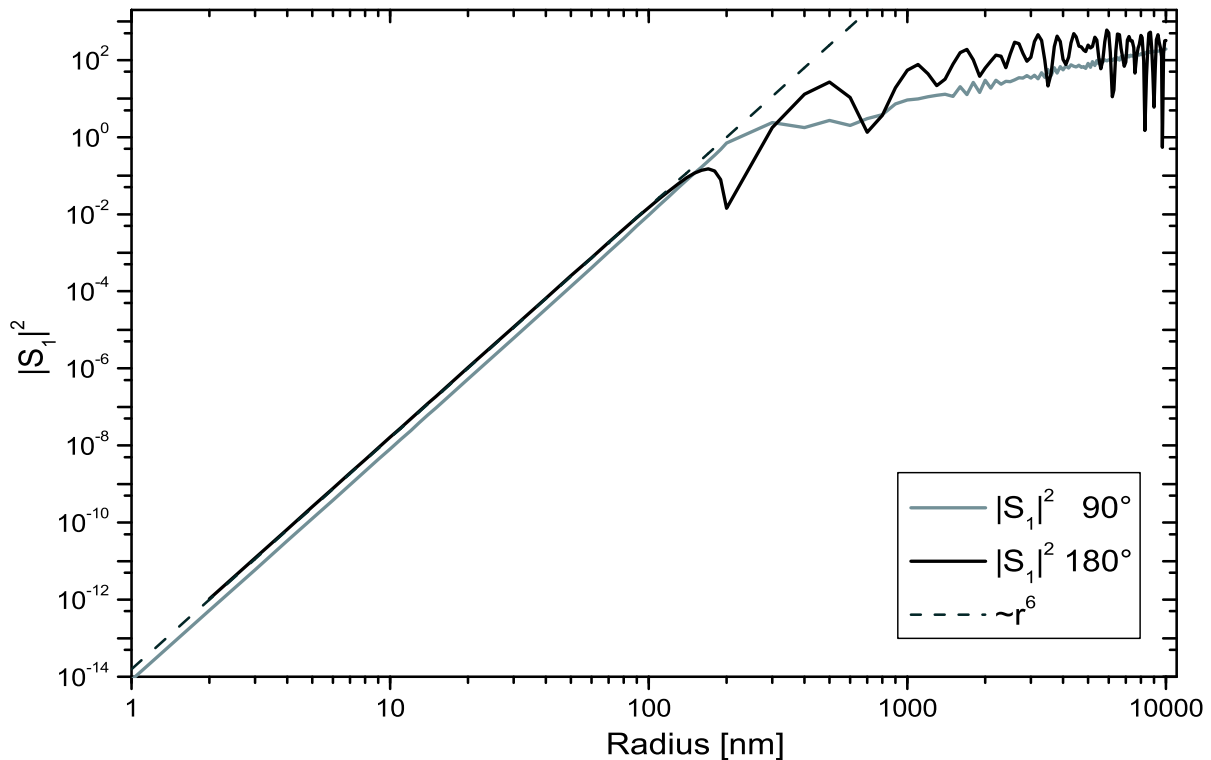


**Abbildung 3.3:** Mie-Streuung: Berechnete Winkelverteilung des Streuparameter  $|S_1|^2$  in beliebigen Einheiten für unpolarisiertes Licht sowie die parallele und senkrechte Polarisationssebene für Zirkondioxidpartikel ( $n_1 = 2,2 - 0,01i$ ), die mit Laserlicht (514,5 nm) beleuchtet werden mit Partikelradien von  $r = 1 \text{ nm}$  (links oben) – ähnlich Rayleighstreuung –,  $r = 0,5 \mu\text{m}$  (rechts oben),  $r = 1 \mu\text{m}$  (links unten) – typische Mie-Streuung – und  $r = 10 \mu\text{m}$  (rechts unten) – Mie-Effekt –.

Am HF-Plasmaexperiment sind auf Grund des gegebenen Aufbaus nicht alle Winkel zugänglich, so daß für die Diagnose von Streulicht nur ein Winkel von  $180^\circ$  (Rückstreuung, wie im Fall der LDA-Diagnostik) bzw.  $90^\circ$



(im Fall der Leuchtspurmessung) in Frage kommt. Für beide Fälle sind die Streulichtintensität noch einmal gesondert in Abbildung 3.4 dargestellt.



**Abbildung 3.4:** Mie-Streuung: Streuparameter  $|S_1|^2$  (unpolarisiert) in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser unter einem Winkel von  $90^\circ$  und  $180^\circ$ .

Im Falle der Rückstreuung ist die Streulichtintensität unabhängig von der Polarisationsrichtung unter einem Winkel von  $90^\circ$  ändert sich die Streulichtintensität mit der Polarisationsrichtung (siehe Abbildung 3.3). Dabei tritt der Effekt auf, daß mit steigendem Partikelradius bei einer (lokalen) maximalen Streulichtintensität für parallel polarisiertes Licht ein (lokales) Streulichtminimum für senkrecht polarisiertes auftritt – und umgekehrt. Durch dieses Verhalten sind für unpolarisiertes Licht die Schwankungen der Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikelradius unter  $90^\circ$  geringer als unter  $180^\circ$ . Bei der Rückstreuung treten zudem in der Regel etwas höhere Intensitäten als unter  $90^\circ$  auf. Die dargestellte Gerade in Abbildung 3.4 geht auf die bekannte Rayleigh-Formel  $I_s \sim \frac{d^6 I_i}{\lambda^4}$  zurück, die für kleine Partikeldurchmesser ( $x < 0,8$  oder  $d < 0,25\lambda$ ) Gültigkeit hat. In diesem Größenbereich ist die Streulichtintensität  $I \sim d^6$ . Auf Grund der vielfältigen (elektromagnetischen) Schwingungsmoden im Partikel treten mit zunehmender Teilchengröße Schwankungen des Streuparameters auf. Mit Hilfe von Gleichung 3.13 kann eine absolute Zahl an Photonen

berechnet werden, die im folgenden mit der Zahl der Photonen, die vom Plasma kommen verglichen werden. Die Kurven für die Rückstreuung, die Streuung unter  $90^\circ$  und der vom Plasma kommenden Photonen werden im Anschluß in einer zusammenfassenden Abbildung 3.5 dargestellt.

### Berechnung der Plasmastrahlung

Das für die Lichtstreuung detektierte Licht wird spektral gefiltert, um den Plasmauntergrund zu unterdrücken und so die Signalqualität zu verbessern. Das hierbei verwendete Interferenzfilter hat eine zentrale Wellenlänge von 514,6 nm mit einer Halbwertsbreite von 1 nm (FWHM). Die relevanten Parameter der zwei im spektralen Transmissionsbereich des Filters auftretenden Ar-Linien sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Argon wird, wie in Kapitel 2.1 beschrieben, als Zentralgas, Mantelgas sowie Trägergas verwendet und ist daher häufig vorhanden.

Element	$\lambda$ [nm]	A [ $10^6\text{s}^{-1}$ ]	g	E [eV]	Übergang
Ar I	515,14	2,39	1	15,3131	$3s^23p^5(2P^\circ 3/2)6d$ ↓ $3s^23p^5(2P^\circ 3/2)4p$
Ar I	515,23	0,11	5	15,3127	$3s^23p^5(2P^\circ 1/2)5d$ ↓ $3s^23p^5(2P^\circ 3/2)4p$

**Tabelle 3.1:** Daten der Argon Spektrallinien im Bereich der Laserwellenlänge (Wellenlänge, Übergangswahrscheinlichkeit, Statistisches Gewicht, Energie des oberen Niveaus, Elektronenkonfigurationen) [NIST03].

Die pro Volumen und Raumwinkel emittierte Leistung wird für eine Linie des Argon im lokalen thermischen Gleichgewicht (LTG) durch den Emissionskoeffizienten angegeben [Berg92]:

$$\varepsilon_{\text{Linie}} = \int_{\text{Linie}} \varepsilon_\nu d\nu = \frac{A_{ik}n_i h\nu}{4\pi} = \frac{A_{ik}hc}{4\pi\lambda} n_{\text{ges}} \frac{g_i}{Z_{\text{S}_{\text{Ar}}}} e^{-\frac{E_i}{kT_e}}, \quad (3.14)$$

wobei  $A_{ik}$  die Übergangswahrscheinlichkeit (die Häufigkeit der Übergänge pro Sekunde) angibt, mit der das angeregte Atom (oder Ion) von einem Zustand  $i$  in den Zustand  $k$  übergeht.  $n_i$  ist hier die Besetzungsdichte des energetisch oberen Zustands  $i$  und  $Z_{\text{S}_{\text{Ar}}}$  die Zustandssumme von Argon,

$n_{\text{ges}}$  die Gesamtteilchendichte,  $g_i$  das statistische Gewicht,  $h$  die Planck-Konstante und  $\nu$  die Frequenz der Strahlung. Die Einheit des Emissionskoeffizienten ist  $\frac{\text{W}}{\text{m}^3 \text{sr}}$ . Die Summe der beiden Linien ist durch

$$\varepsilon_{\text{Linien}} = \sum_j \frac{A_{ik}^{(j)} hc}{4\pi \lambda^{(j)}} n_{\text{ges}} \frac{g_i^{(j)}}{Z_{\text{SAr}}} e^{-\frac{E_i^{(j)}}{kT_e}} \quad (3.15)$$

gegeben. Da  $E_i^{(1)}$  und  $E_i^{(2)}$  (siehe Tabelle 3.1) bis auf Nachkommastellen gleich sind, vereinfacht sich (3.15) unter Verwendung von  $p = nkT_G$  (Gasgleichung mit der Boltzmannkonstante  $k$ ) und  $Z_{\text{SAr}} \approx 1$  zu:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{Linien}} &= \frac{hc}{4\pi} \frac{p}{kT_G} \tilde{c} \cdot e^{-\frac{E_i}{kT_e}}, & (3.16) \\ &\text{mit} \\ \tilde{c} &= \frac{g_i^{(1)} A_{ik}^{(1)}}{\lambda^{(1)}} + \frac{g_i^{(2)} A_{ik}^{(2)}}{\lambda^{(2)}} \\ &= (2,129 + 0,972) \cdot 10^{12} (\text{ms})^{-1} = 3,10 \cdot 10^{12} (\text{ms})^{-1}, \end{aligned}$$

wobei  $T_G \simeq T_e = T$ . In [Schu97] wird die Selbstabsorption der Argon-Linien diskutiert. Es zeigt sich, daß selbst für die stärkste (und damit kritischste) Linie bei 696,5 nm erst für Temperaturen nahe 10000 K und Drücken nahe 1000 hPa Abweichungen vom optisch dünnen Fall auftreten. Die betrachteten Linien können im folgenden als optisch dünn angenommen werden, so daß dessen Emission nur noch von der Temperatur abhängig ist:

$$\varepsilon_{\text{Linien}} = \frac{e^{-\frac{1,74 \cdot 10^5}{T[\text{K}]}}}{T[\text{K}]} \cdot 1,77 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \text{sr}}, \quad (3.17)$$

wobei ein Druck von  $p = 5 \cdot 10^4$  Pa unter Prozeßbedingungen eingesetzt wurde.

Zu der berechneten Linienstrahlung muß noch die Kontinuumsstrahlung addiert werden. Die Strahlung erfolgt durch Übergänge im kontinuierlichen Energiebereich oberhalb der Ionisationsenergie („frei-frei-Übergänge“) und durch Rekombination von freien Elektronen mit Ionen („frei-gebunden-Übergänge“). Der spektrale Emissionskoeffizient ist

$$\varepsilon_\nu(\nu) = \varepsilon_\nu^{\text{ff}}(\nu) + \varepsilon_\nu^{\text{fg}}(\nu). \quad (3.18)$$

Bei Maxwell-Verteilung der Geschwindigkeiten liefert die Kramers-Formel für den Emissionskoeffizienten des Gesamtkontinuums [Berg92]:

$$\varepsilon_\nu(\nu) = CZ_{\text{Ion}}^2 \frac{n_e n_i}{\sqrt{kT}} \xi, \quad (3.19)$$

$$C = \frac{e^6}{12\pi^2 \sqrt{6\pi} \varepsilon_0^3 c^3 m_e^{3/2}} = 2,02 \cdot 10^{-63} \frac{\text{m}^6 \text{kg}^{3/2}}{\text{s}^3 \text{sr}}, \quad (3.20)$$

wobei  $Z_{\text{Ion}}$  die Ladungszahl der Ionen,  $n_e$  die Elektronendichte und  $n_i$  die Ionendichte ist. Der schwach temperaturabhängige quantenmechanische Korrekturfaktor  $\xi \approx 1$  (SCHLÜTER-Faktor) berücksichtigt in der Formel des Emissionskoeffizienten die atomare Struktur der Ionen im Plasma. Für das Argon-Plasma bei 10000 K ist  $\xi \simeq 1,5$  [Hofs78], wenn der Wellenlängenbereich um 514,5 nm betrachtet wird. Der in Gleichung 3.20 gegebene spektrale Emissionskoeffizient ist von der Frequenz unabhängig. Im folgenden wird über den vom Interferenzfilter durchgelassene Spektralbereich ( $\lambda_0 = 514,6 \pm 0,5$  nm, bzw.  $\nu_0 = \frac{c}{\lambda_0} = 5,83 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$  und  $\Delta\nu = 5,98 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$ ) integriert. Der Emissionskoeffizient kann bei einfacher Ionisation ( $n_i = n_e$ ,  $Z_{\text{Ion}} = 1$ ) geschrieben werden als:

$$\varepsilon_{\text{kont.}} = CZ_{\text{Ion}}^2 \frac{n_e^2}{\sqrt{kT}} \xi 2\Delta\nu. \quad (3.21)$$

Die Elektronendichte kann mit der Saha-Eggert-Gleichung ermittelt werden, die in der Form

$$n_e^2 = n_{\text{Atom}} 2 \frac{Z_{\text{S Ion}}}{Z_{\text{S Atom}}} \left( \frac{2\pi m_e kT}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{\text{ion}}}{kT_e}\right) \quad (3.22)$$

dargestellt werden kann [Berg92]. Gleichung 3.21 ist damit nur noch von der Temperatur abhängig:

$$\varepsilon_{\text{kont.}} = 4CZ_{\text{Ion}}^2 \xi \Delta\nu p \frac{Z_{\text{S Ion}}}{Z_{\text{S Atom}}} \left( \frac{2\pi m_e}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{\text{ion}}}{kT_e}\right). \quad (3.23)$$

Wegen des niedrigen Ionisationsgrades von  $< 1\%^1$  kann für die Neutralteilchendichte  $n_{\text{Atom}} = p/kT$  gesetzt werden. Bei einem Prozeßdruck von

---

<sup>1</sup>bei 12000 K beträgt die maximale Elektronendichte  $n_e \simeq 10^{21} \text{ m}^{-3}$  und die Atomdichte  $n_{\text{Atom}} \simeq 3 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$

$p = 5 \cdot 10^4$  Pa und Zustandssummen von  $Z_{\text{SAtom}} = 1$  und  $Z_{\text{SIon}} = 5,6$  folgt

$$\varepsilon_{\text{kont.}} = e^{\frac{-1,82 \cdot 10^5}{T[\text{K}]}} 9,55 \cdot 10^{10} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \text{sr}}. \quad (3.24)$$

Der gesamte Emissionskoeffizient ist die Summe der einzelnen Emissionskoeffizienten aus den Gleichungen 3.17 und 3.24:

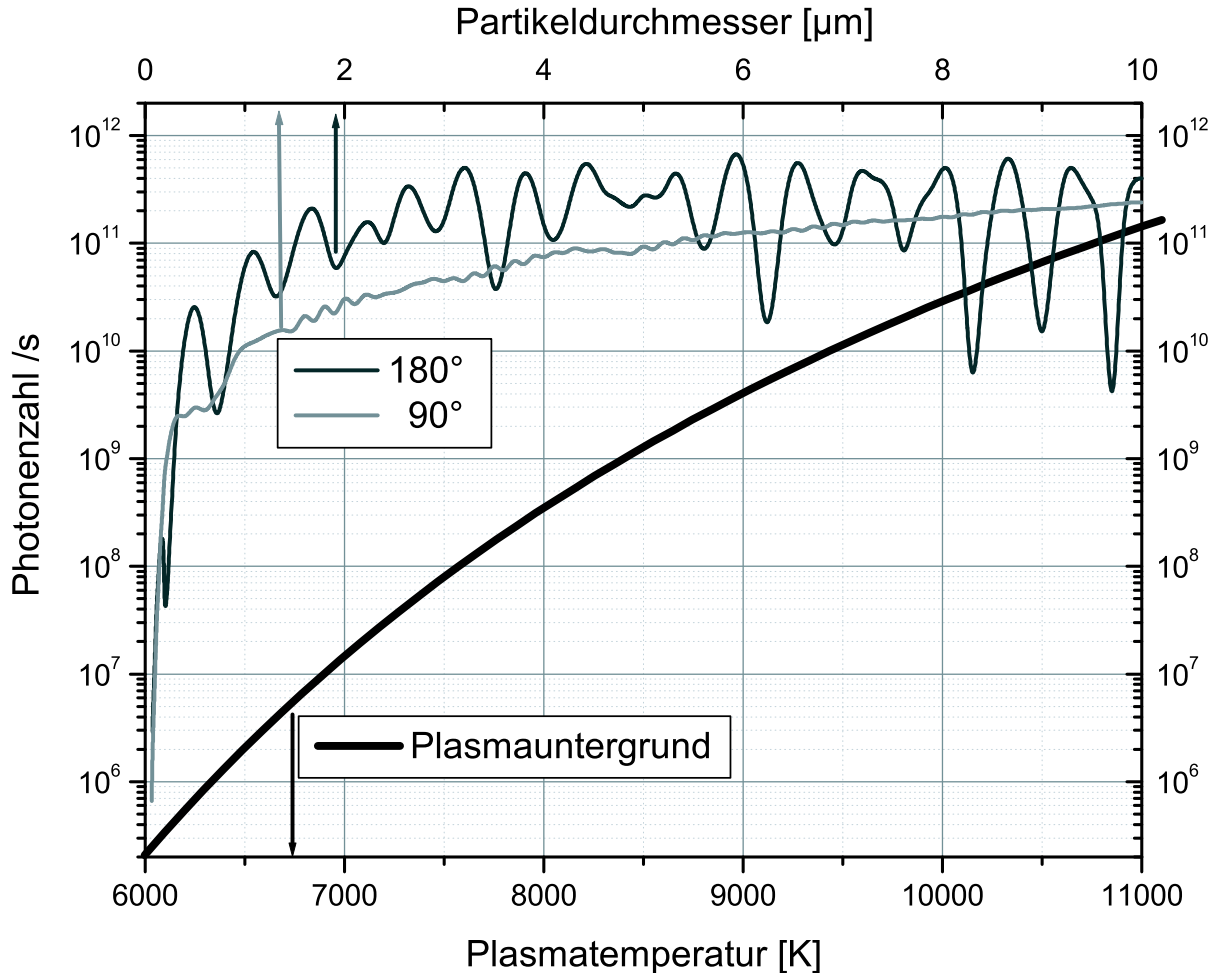
$$\varepsilon_{\text{gesamt}} = \varepsilon_{\text{kont.}} + \varepsilon_{\text{Linie}}. \quad (3.25)$$

Der Photonenfluß auf den Detektor kann aus der Emission abgeschätzt werden:

$$\begin{aligned} \dot{N}_{\text{Photonen}} &\simeq \varepsilon_{\text{gesamt}} \frac{\lambda}{hc} V_{\text{mess}} \Delta\Omega, \\ &\simeq \varepsilon_{\text{gesamt}} d_{\text{Pl}} \frac{\lambda}{hc} A_{\text{mess}} \Delta\Omega \\ &\simeq \varepsilon_{\text{gesamt}} \cdot 1,7 \cdot 10^7 \frac{\text{m}^3 \text{sr}}{\text{Ws}}. \end{aligned} \quad (3.26)$$

Dabei wird die Strahlung in den Raumwinkel  $\Delta\Omega = 5,5 \cdot 10^{-3}$  sr, aus einem Teil des Plasmas mit einer Fläche von  $A_{\text{mess}} = 4 \cdot 10^{-8} \text{m}^2$  und einem Durchmesser von  $d_{\text{Pl}} = 3 \cdot 10^{-2} \text{m}$  betrachtet. Die Abhängigkeit der vom Plasma im Wellenlängenbereich um 514,6 nm abgestrahlten Photonenzahl, die pro Sekunde auf den Detektor treffen, von der Plasmatemperatur ist in Abbildung 3.5 dargestellt (untere x-Achse). Zum Vergleich mit der Photonenzahl, die als Streulicht vom Teilchen abgestrahlt werden, ist in der selben Abbildung die Photonenzahl in Abhängigkeit von der Partikelgröße für Streuung in  $90^\circ$  und  $180^\circ$  aufgetragen (obere x-Achse). Auf Grund der Plasmastrahlung ergibt sich bei Temperaturen von etwa 11000 K insgesamt ein maximaler Streulichtuntergrund von etwa  $1,5 \cdot 10^{11}$  Photonen pro Sekunde. Vergleicht man dies nun mit der Streulichtintensität, die von einem Partikel ausgeht, entspricht eine Photonenzahl von  $1,5 \cdot 10^{11}$  Photonen pro Sekunde die eines Partikel mit einem Radius von ca.  $7 \mu\text{m}$  bei Streuung unter  $90^\circ$  bzw.  $3 \mu\text{m}$  unter  $180^\circ$  (obere x-Achse). In den heißesten Stellen des Plasmas können also nur die größeren Partikel detektiert werden (bei der LDA bis zu  $3 \mu\text{m}$  und bei der Leuchtspurmethode bis zu  $7 \mu\text{m}$  Durchmesser). Bei Messungen in kälteren Bereichen des Plasmas, bei Temperaturen bis zu 9000 K, treffen vom Plasma etwa  $4 \cdot 10^9$  Photonen pro Sekunde auf

den Detektor. Das heißt, mit Hilfe der LDA können noch Partikel mit einem Durchmesser von etwa  $0,5 \mu\text{m}$  und mit der Leuchtspurmethode von etwa  $1 \mu\text{m}$  erfaßt werden.

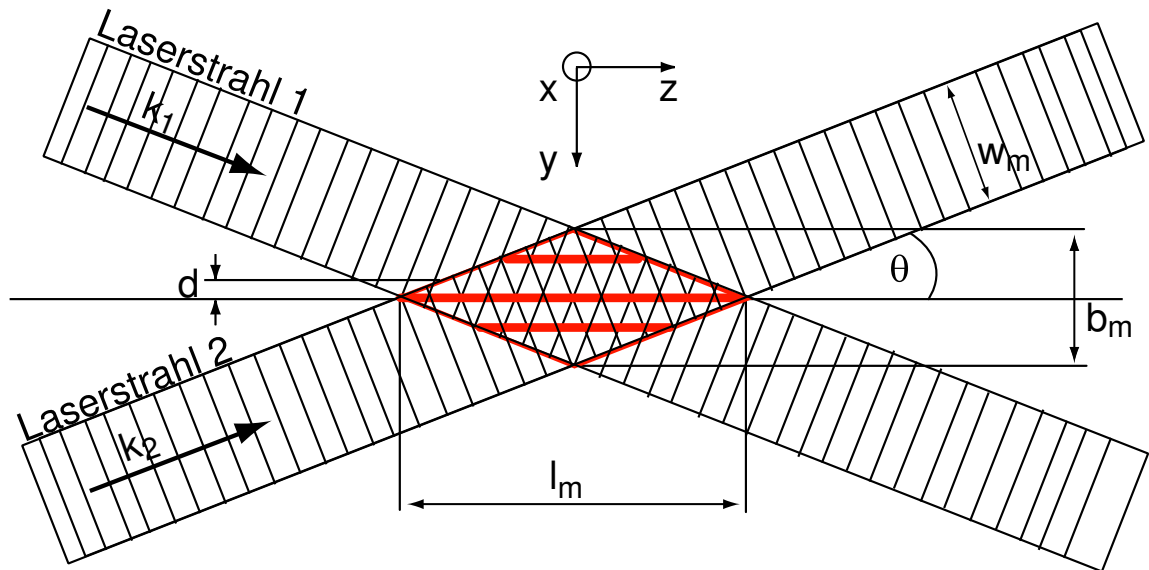


**Abbildung 3.5:** Theoretischer Vergleich der Streulichtintensität der Partikel mit der Strahlung vom Plasma: Anzahl der pro Sekunde am Photomultiplier auftreffenden Photonen aus der Plasmauntergrundstrahlung in Abhängigkeit von der Plasmatemperatur (untere Kurve) und Photonenzahl auf Grund der Mie-Streuung in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser unter  $90^\circ$  und  $180^\circ$  für unpolarisiertes Licht (obere Kurven).

## 3.2 Laser-Doppler-Anemometrie (LDA)

Mit Hilfe der LDA lassen sich in situ Partikelgeschwindigkeiten und Häufigkeiten bestimmen. Im folgenden wird ein kurzer theoretischer Überblick zum Prinzip gegeben und anschließend der Aufbau diskutiert.

### 3.2.1 Prinzip und Modell der LDA



**Abbildung 3.6:** LDA-Prinzip: Interferenz beim Schnitt von zwei Laserstrahlen unter dem Winkel  $2\theta$ .

Als Standardtechnik in der Laser-Doppler-Anemometrie, die 1964 von YEH und CUMMINS [Yeh64] vorgestellt wurde, hat sich die Zweistrahlmethode, wie sie auch in den hier beschriebenen Experimenten eingesetzt wird, durchgesetzt [Ruck90]. Das Meßvolumen wird durch den Schnittpunkt zweier kohärenter, fokussierter Laserstrahlen gebildet, die beide in  $x$ -Richtung polarisiert sind. Die sich unter dem Winkel  $2\theta$  schneidenden Strahlen werden im Meßvolumen als ebene Wellen mit den Wellenvektoren  $\vec{k}_1$  und  $\vec{k}_2$  aufgefaßt. Es gilt  $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2| = |\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$ , wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des verwendeten Laserlichts ist. Bewegt sich ein Teilchen durch dieses Meßvolumen, so wird das gestreute Licht moduliert. Mit einem einfachen Modell (dem Streifenmodell) kann der Mechanismus beschrieben werden. Aus der Überlagerung der beiden Laserstrahlen (Interferenz) wird die lokale Intensität berechnet. Die zeitabhängige, elektrische Feldstärke lautet jeweils für Strahl 1 oder Strahl 2, die in  $x$ -Richtung polarisiert sind:

$$\vec{E}_{1,2} = E_{1,2} \cos \left( \omega t - \vec{k}_{1,2} \cdot \vec{r} + \xi_{1,2} \right) \vec{e}_x. \quad (3.27)$$

Dabei gibt  $E_{1,2}$  die Amplitude,  $\xi_{1,2}$  die Phase,  $\omega$  die Kreisfrequenz der einfallenden Welle,  $\vec{r}$  den Ortsvektor und  $\vec{e}_x$  den Einheitsvektor in  $x$ -Richtung an. Die Intensität ist proportional zum zeitlichen Mittelwert des Quadrates

der resultierenden elektrischen Feldstärke:

$$I \sim \left\langle \left( \vec{E}_1 + \vec{E}_2 \right)^2 \right\rangle. \quad (3.28)$$

Gleichung 3.27 in 3.28 eingesetzt liefert nach zeitlicher Mittelung:

$$I \sim \frac{1}{2} (E_1^2 + E_2^2) + E_1 E_2 \cos \left( \left( \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \right) \cdot \vec{r} + \xi_2 - \xi_1 \right). \quad (3.29)$$

Aus Abbildung 3.6 ist ersichtlich, daß  $\vec{k}_1 - \vec{k}_2 = 2 \left| \vec{k} \right| \sin \theta \cdot \vec{e}_y$  ist. Dieser Zusammenhang kann in Gleichung 3.29 eingesetzt werden. Man erhält:

$$\left( \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \right) \cdot \vec{r} = 2 \left| \vec{k} \right| \sin \theta \vec{e}_y \cdot \vec{r} = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta y \quad (3.30)$$

und

$$I \sim \frac{1}{2} (E_1^2 + E_2^2) + E_1 E_2 \cos \left( \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta y + \xi_2 - \xi_1 \right). \quad (3.31)$$

Gleichung 3.31 zeigt die Intensität im Meßvolumen in  $y$ -Richtung, bei der sich Orte maximaler und minimaler Helligkeit (Interferenzstreifen) in  $y$ -Richtung abwechseln. Der Streifenabstand  $d$  dieser Extrema ist

$$d = \frac{\lambda}{2 \sin \theta}. \quad (3.32)$$

Der Streifenabstand beträgt also bei  $\lambda = 514,5 \text{ nm}$  und  $\theta = 3,43^\circ$  (entsprechend dem Versuchsaufbau und den Spezifikationen des Anemometerkopfes):  $d = 4,29 \text{ }\mu\text{m}$ .

Bewegt sich ein Teilchen durch dieses Streifenmuster, wird abwechselnd minimales und maximales Streulicht ausgesendet. Die Modulationsfrequenz  $f_D$  des vom Teilchen ausgesendeten Streulichts ist proportional zur Geschwindigkeitskomponente  $v_y$ . Aus jedem registrierten modulierten Streusignal kann  $v_y$  des Teilchen mittels

$$v_y = \frac{d}{T_D} = d \cdot f_D = \frac{\lambda f_D}{2 \sin \theta} \quad (3.33)$$

berechnet werden. Die Periodendauer  $T_D$  bzw. die Dopplerfrequenz  $f_D = \frac{1}{T_D}$  kann aus dem gemessenen Signal mittels Fouriertransformation bestimmt werden. Mit einem Photomultiplier wird das Streulichtsignal in ein elektrisches Signal umgewandelt.



Die Überlagerung der beiden Laserstrahlen mit einem Strahlradius  $r_S = \frac{w_m}{2} = 0,4 \text{ mm}$  im Schnittpunkt erzeugt ein Meßvolumen in der Form eines Ellipsoids. Die Halbachsen sind:

$$a_m = \frac{r_S}{2 \cos \theta}, \quad b_m = \frac{r_S}{2}, \quad l_m = \frac{r_S}{2 \sin \theta},$$

also hier  $a_m = 0,20 \text{ mm}$ ,  $b_m = 0,20 \text{ mm}$  und  $l_m = 3,34 \text{ mm}$ . Das Volumen läßt sich entsprechend berechnen:

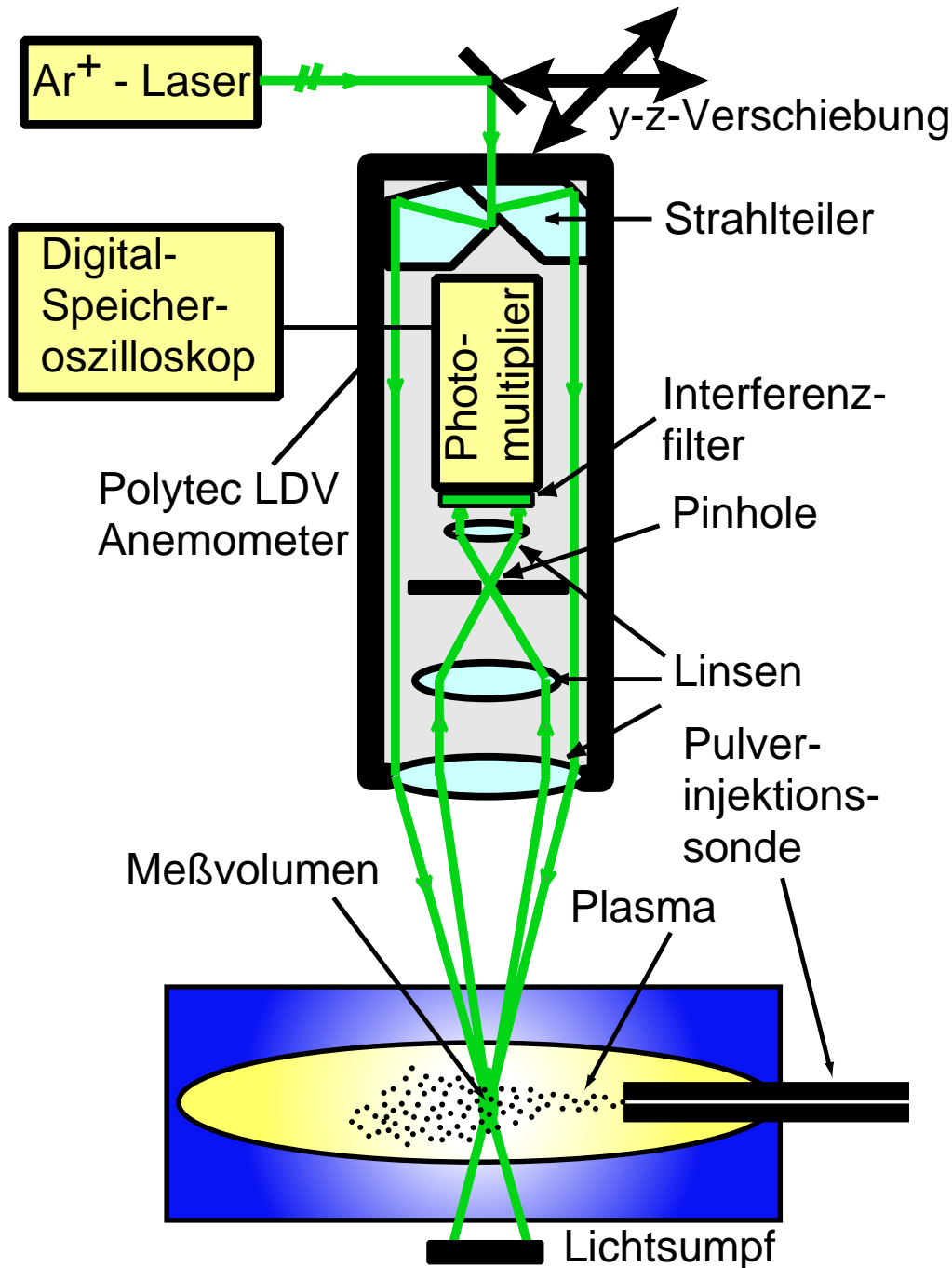
$$V = \frac{4}{3} \pi a_m b_m l_m = \frac{\pi}{3} \frac{r_S^3}{\sin 2\theta} = 0,56 \text{ mm}^3. \quad (3.34)$$

### 3.2.2 Experimenteller Aufbau und Signalauswertung der LDA

#### Aufbau

Der einfallende Laserstrahl wird im Anemometer (kommerzieller Messkopf, Polytec) mit einem Strahlteiler in zwei Teilstrahlen aufgespalten und mit einer Linse in das Meßvolumen (Plasma) abgebildet. Der experimentelle Aufbau der LDA Messungen ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Das rückgestreute Licht wird von einem Linsensystem aufgesammelt und auf den Photomultiplier fokussiert. Vor dem Multiplier befindet sich ein schmalbandiges Filter mit einer Halbwertsbreite von  $0,5 \text{ nm}$  bei  $\lambda = 514,6 \text{ nm}$  [LOT95] zur Unterdrückung von Untergrundleuchten. Die vom Photomultiplier kommenden Signale werden über ein BNC-Kabel auf den Eingang eines digitalen Speicheroszilloskops gegeben. Die aufgenommenen Ereignisse werden dann direkt mit einer **F**ast **F**ourier **T**ransformation (FFT) in ein entsprechendes Frequenzspektrum transformiert. Die Höhe der Signale liegt dabei im Bereich von einigen mV, die bei Bedarf mit einem vorgeschalteten Verstärker erhöht werden können. Am Photomultiplier wurde in der Regel eine Hochspannung von  $800 \text{ V}$  angelegt. An jeder Meßposition werden mehrere Signale aufgenommen (bei den meisten Messungen wenigstens 100) und über deren FFT gemittelt. Typische Werte für die Darstellung und Verarbeitung der Signale am Oszilloskop sind die Aufnahme von 10000 Samples bei einer maximalen Abtastrate von  $1 \text{ GSamples/s}$ . Das gemittelte Spektrum wird gespeichert und anschließend am PC ausgewertet. Diese Form der Signalaufnahme ermöglicht es zum einen, direkt die Qualität des Streusignals ständig zu überprüfen, so daß somit neben

der optischen Kontrolle mit Hilfe einer selbst entwickelten Mikroskopoptik eine weitere Kontrolle der Pinhole-Justage besteht, da dies einen entscheidenden Einfluß auf die Signalerfassung hat. Mit „klassischen“ Verfahren ist diese direkte Signalkontrolle nicht möglich.



**Abbildung 3.7:** Schematischer Aufbau des LDA Experimentes.

Ein weiterer Vorteil der Auswertung ist die Menge an gewonnenen Informationen aus dem Streulicht. Der Einsatz eines digitalen Speicheroszilloskops

bietet eine schnelle und unkomplizierte Analyse der Signale, aus denen neben der Modulationsfrequenz auch noch weitere Informationen gewonnen werden können, wie zum Beispiel die Verteilung der detektierten Frequenzen sowie der Modulationsgrad und die Intensität der Streusignale, die beide einen Anhaltspunkt über die Partikelgrößen geben. Eine quantitative Größenbestimmung mit dem vorgestellten LDA-Aufbau ist nur möglich, wenn statistisch bekannt ist, auf welchen Bahnen sich die Teilchen durch das Meßvolumen bewegen, da ein kleineres Partikel im Zentrum die selbe Streulichtintensität wie ein größeres am Rand erzeugt. Dazu muß eine Verteilung angenommen werden, die eine Unsicherheit mit sich bringt. Auf Grund der möglichen Partikelgrößenverteilung ergibt sich mit der Verteilung der Flugbahnen eine zweidimensionale Verteilung, aus der über viele Messungen von Einzelsignalen eine, mit Hilfe des Modulationsgrades, Größenverteilung abgeschätzt werden kann. Zur Auswertung muß jedes Signal gefiltert und das Rauschen entfernt werden, wonach die Pulshöhen bestimmt werden und eine Verteilung der auftretenden Intensitäten gespeichert werden. Anschließend kann eine Korrektur auf die möglichen Flugbahnparameter erfolgen und schließlich mit Hilfe von Matrizenrechnungen eine Größenverteilung berechnet werden. Dieses Verfahren ist mit dem gegebenen Aufbau sehr zeitintensiv zu realisieren und relativ ungenau, weshalb auf eine Bestimmung der Partikelgrößen mit Hilfe der LDA in den folgenden Messungen nicht durchgeführt wurde. Mit einem PLDA (Phasen Laser Doppler Anemometrie) kann eine genaue Partikelgrößenbestimmung durchgeführt werden. Statt dessen kam im folgenden – als vergleichsweise direktes Meßverfahren – das Leuchtspurverfahren zum Einsatz, mit dem die Partikelgrößen bestimmt wurden.

Da man mit Laser Doppler Systemen nicht feststellen kann, ob die Strömung in Vorwärts- oder in Rückwärts-Richtung verläuft, wird durch eine Frequenzverschiebung des Laserlichts der Nullpunkt verschoben. Die Werte oberhalb der Verschiebungsfrequenz entsprechen z.B. der Strömungsgeschwindigkeit in einer Richtung und die Werte unterhalb der Verschiebungsfrequenz der Strömungsgeschwindigkeit in die entgegengesetzte Richtung. Die Frequenzverschiebung der beiden Strahlen wird durch den Einsatz von Braggzellen realisiert. Mit Braggzellen ist es möglich, die Frequenz eines Laserstrahls um einen einstellbaren Betrag zu verschieben. Erreicht wird dies dadurch, daß ein piezoelektrischer Wandler in einem Kristall eine laufende Welle erzeugt. Durch diese Welle wird der Brechungs-

index des Kristalls variiert. Ein Laserstrahl, der auf diesen Kristall trifft, wird in Strahlen verschiedenster Ordnung aufgespalten. Da die meiste Laserenergie im Strahl der ersten Ordnung enthalten ist, werden alle anderen Ordnungen mit einer Lochblende ausgeblendet. Die Wirkungsweise einer Braggzelle ist schematisch in Abbildung 3.8 dargestellt.

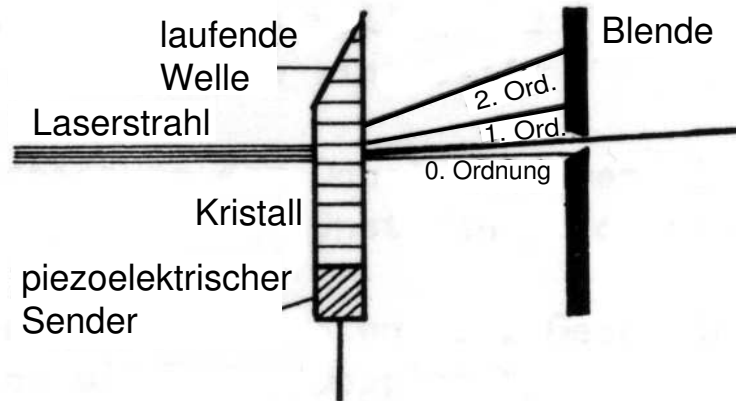


Abbildung 3.8: Wirkungsweise einer Braggzelle.

Der Strahl der ersten Ordnung ist um die Frequenz mit der die Braggzelle angesteuert wird von der ursprünglichen Frequenz des Laserstrahls verschoben. Wird nun in den Strahlengang der beiden Laserstrahlen in Abbildung 3.7 – wie in Abbildung 3.9 dargestellt – je eine Braggzelle eingebaut (was im Experiment durch ein vorgefertigtes Modul realisiert werden kann) und diese mit den Frequenzen  $f_{0B} + f_s$  und  $f_{0B} - f_s$  betrieben ( $f_{0B}$  Zentralfrequenz zur Braggzelle), erhält man im Meßvolumen ein Interferenzstreifensystem, das sich mit der Differenzfrequenz der beiden Laserstrahlen  $2f_s$  bewegt. Diese Anordnung wurde für die Experimente in Abschnitt 5.2 im Labor verwendet.

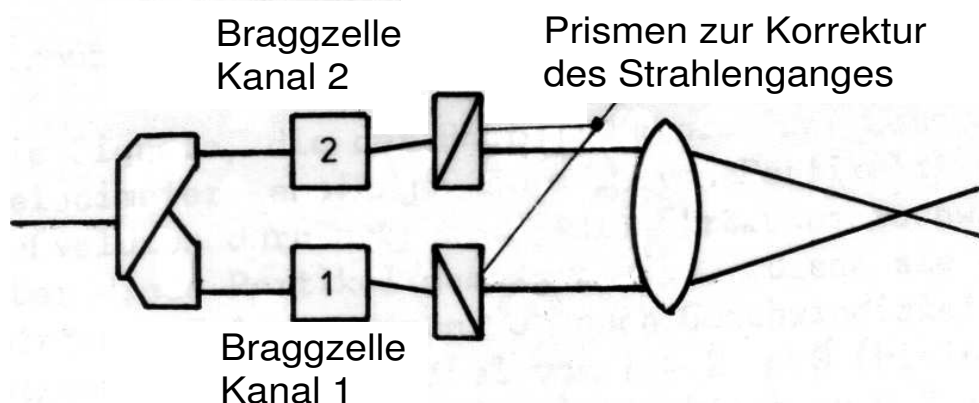
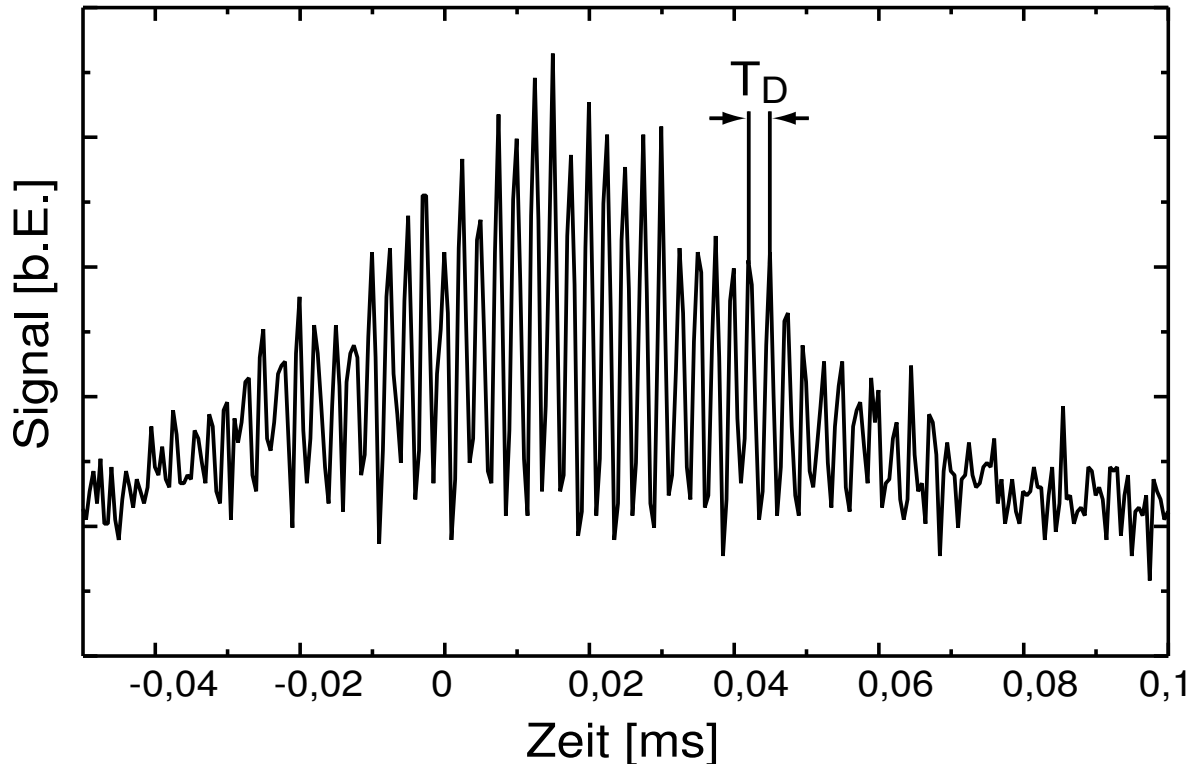


Abbildung 3.9: Doppelbraggzellen-Aufbau.

### Auswertung der aufgenommenen Signale

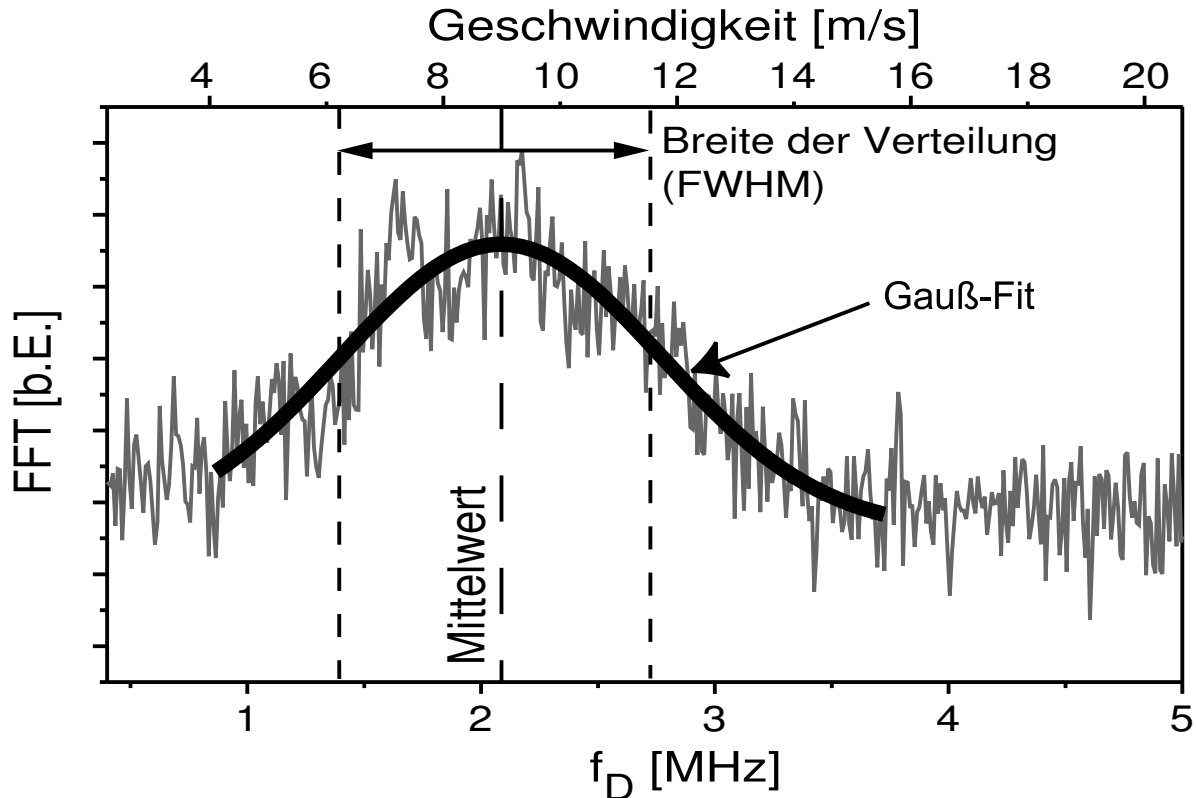
An Pulverteilchen, die sich durch das Interferenzstreifenmuster bewegen, wird das zurückgestreute Licht mit einer Frequenz moduliert, die sich aus der Partikelgeschwindigkeit und dem Streifenabstand ergibt.



**Abbildung 3.10:** Auswertung der LDA Signale: Exemplarischer Signalverlauf bei Durchgang eines Teilchens durch das Meßvolumen bei Messungen in Luft mit dem externen Vernebler.

Ein exemplarisches Streubild eines Teilchens im Meßvolumen bei einer Messung in Luft ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Für dieses Teilchen läßt sich seine Geschwindigkeitskomponente normal zu den Streifen direkt aus der Zeit  $T_D$  und dem bekanntem Streifenabstand (nach Gleichung 3.32) mit Gleichung 3.33 bestimmen. Mit dem digitalen Speicheroszilloskop kann direkt für einen Signalverlauf mit Hilfe der FFT eine Frequenzanalyse durchgeführt werden. Anschließend wird die so gewonnene Frequenzverteilung über mehrere Ereignisse gemittelt. In Abbildung 3.11 ist eine solche Verteilung dargestellt, die – mit dem Streifenabstand multipliziert – direkt eine Verteilung der gemessenen Geschwindigkeiten ergibt. Das Maximum dieser Verteilung ist die mittlere Partikelgeschwindigkeit und die Breite der Verteilung der Bereich von auftretenden Geschwindigkeiten der Partikel.

Je nach Versuchsbedingung lag diese Breite hier zwischen 2 und 20 m/s. In der Beispielabbildung 3.11 beträgt die mittlere Geschwindigkeit 9 m/s mit einer Breite von 4 m/s.



**Abbildung 3.11:** Auswertung der LDA Signale: Beispiel einer Frequenzverteilung (Geschwindigkeitsverteilung) und Gauß-Fit der Verteilung bei einer Messung in Luft mit dem externen Vernebler nach Mittelung über 1000 mittels FFT analysierte Signale.

Neben der Bestimmung der Partikelgeschwindigkeiten ist es ebenfalls möglich, anhand der Anzahl der detektierten Ereignisse die relative Partikelanzahl im Meßvolumen zu bestimmen, womit Aussagen über Zu- bzw. Abnahme der Partikelzahlen getroffen werden können (und damit indirekt über die Partikelverdampfung). Zur Bestimmung der relativen Partikelzahlen wird wie folgt vorgegangen: am Oszillographen wird ein Schwellwert gerade so eingestellt, daß nur Ereignisse erfaßt werden, die oberhalb des Untergrunds liegen. Erzeugt ein Teilchen im Meßvolumen ein Streulichtsignal, was oberhalb dieses Schwellwertes liegt, wird es registriert und ausgewertet. Die Zeit bis zum Erreichen von vielen Ereignissen gibt die Anzahl der aufgenommenen Ereignisse – und somit detektierte Partikel – pro Sekunde. Mit dem LDA-System können, wie in Abschnitt 3.1.2 gezeigt, nur Partikel ab einer Größe von etwa  $1\ \mu\text{m}$  Durchmesser mit Sicherheit de-

tektiert werden. Kleinere Teilchen, auch solche, deren Durchmesser durch Abdampfung unter  $1\ \mu\text{m}$  abgenommen hat, können nicht mehr erfaßt werden.

### Fehlerbetrachtung

Nach Gleichung 3.33 ist der relative Fehler bei der Bestimmung der Geschwindigkeiten durch

$$\frac{\delta v_y}{v_y} = \frac{\delta f_D}{f_D} + \frac{\delta \theta}{\theta} \quad (3.35)$$

gegeben. Hierbei geht für die Abschätzung des Fehlers die Näherung  $\sin \theta \simeq \theta$  ein. Der größte Fehler bei der Bestimmung des Strahlkreuzungswinkels  $2\theta$  entsteht durch die sphärische Aberration der fokussierenden Linse. Für eine dünne Linse mit einer Brennweite  $f$  und einem Brechungsindex  $n$  ergibt sich dadurch eine Abweichung  $\Delta y$  vom geometrisch-optischen Bildpunkt von der optischen Achse [Klei88] von:

$$\Delta y = Ah^3 s. \quad (3.36)$$

Dabei bezeichnet  $s$  den Abstand des Bildpunktes und  $h$  den maximalen Abstand von der optischen Achse eines einfallenden Strahls in der Linsenebene. Der Faktor  $A$  berechnet sich nach [Klei88]:

$$A = -\frac{1}{8f^3 n(n-1)} \left[ \frac{n+2}{n-1} q^2 + 4(n+1)pq + (3n+2)(n-1)p^2 + \frac{n^3}{n-1} \right], \quad (3.37)$$

mit dem Formfaktor  $q$ , der durch die Krümmungsradien  $R, R'$  der Linsenflächen bestimmt ist und dem Lagefaktor  $p$ :

$$q = \frac{R' + R}{R' - R} \quad \text{und} \quad p = 1 - \frac{2f}{s}. \quad (3.38)$$

Mit den im Experiment gegebenen Werten ist für eine Plankonvexlinse  $q = -1$  und bei  $s = f = 500\ \text{mm}$   $p = -1$ , wonach sich bei einem Brechungsindex von  $n \simeq 1,5$  ein Faktor  $A = 3,6 \cdot 10^{-8}\ \text{mm}^{-3}$  ergibt. Bei einem Strahlenabstand von  $60\ \text{mm}$  ( $h = 30\ \text{mm}$ ) erhält man durch die sphärische Aberration eine Abweichung von  $\Delta y = 0,468\ \text{mm}$  was für die Bestimmung des Kreuzungswinkels einen Fehler von  $1,62\%$  ausmacht. Zur

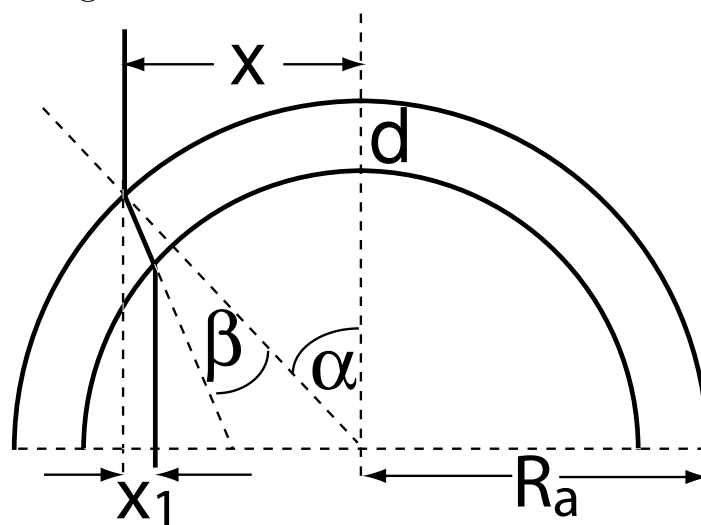
Ermittlung der Dopplerfrequenz wurde das Frequenzmaximum der gemittelten Fourierspektren der Streulichtsignale bestimmt. Dazu wurde eine Gaußförmige Verteilung an das Frequenzspektrum angefitet. Das Maximum der gefitteten Verteilung (wie in Abbildung 3.11) wurde zur Bestimmung der Geschwindigkeiten verwendet. Bei den gemessenen Verteilungen lagen die Frequenzen in einem Bereich von 2-20 MHz bei maximalen Abweichungen (durch den Gauß-Fit) von 0,1 MHz. Der maximale relative Fehler bei der Bestimmung des Frequenzmaximums beträgt demnach bis zu 5%. Insgesamt beträgt der relative Fehler bei der Bestimmung der *mittleren* Geschwindigkeit bis zu 6,62%.

### Einfluß des Quarzrohres und des Plasmas

Bei der Messung der axialen Geschwindigkeiten bewirkt das Quarzrohr einen Versatz der Sehstrahlen in radialer Richtung, je weiter man sich von der Quarzrohrmitte um den Betrag  $x$  entfernt. Den Versatz der  $x$ -Position  $x_1$  in der Objektebene im Plasma erhält man aus der radialen Position  $x$  (ohne Entladungsrohr) durch die Formel

$$x_1 = \frac{xd}{R_a} \left( 1 - \sqrt{\frac{R_a^2 - x^2}{n_Q^2 R_a^2 - x^2}} \right), \quad (3.39)$$

mit dem Außendurchmesser des Quarzrohres  $R_a$ , der Dicke des Quarzrohres  $d$  und dem Brechungsindex von Quarz  $n_Q = 1,456$ . Dieser Zusammenhang kann leicht hergeleitet werden:



**Abbildung 3.12:** Schematische Darstellung der Brechung eines Laserstrahls an der Rohrwand.



Es gilt das Brechungsgesetz beim Übergang von Luft ( $n_{\text{Luft}} = 1$ )

$$\frac{\sin \alpha}{\sin \beta} = n_{\text{Q}}. \quad (3.40)$$

Aus der Abbildung 3.12 folgt

$$\sin \alpha = \frac{x}{R_a}, \quad \cos \beta = \frac{d}{l} \quad \text{und} \quad \frac{x_1}{l} = \sin(\alpha - \beta), \quad (3.41)$$

wobei  $l$  die Strecke ist, die das Licht durch das Quarz zurücklegt. Durch Einsetzen von 3.40 und 3.41 sowie mit Hilfe der trigonometrischen Additionstheoreme erhält man Gleichung 3.39. Die Messungen mit der LDA liegen bei dem Großteil der Messungen in einem Bereich von  $x = \pm 10$  mm von der Mitte des Quarzrohres, dies ergibt einen maximalen Versatz der letzten Meßpunkte in Richtung der Plasmamitte von 0,27 mm. Auf Grund der Breite des Meßvolumens von 0,2 mm kann die radiale Position unter Berücksichtigung des radialen Versatzes auf etwa  $\pm 0,1$  mm genau angegeben werden. In axialer Richtung betrachtet bewirkt das Quarzrohr eine vertikale Verschiebung des Meßvolumens um wenige  $\mu\text{m}$  nach unten, was jedoch auf Grund dessen Länge von  $l_m = 3,34$  mm nur einen geringen Einfluß auf die Messung hat.

Auf Grund des niedrigen Ionisationsgrades des Plasmas von weniger als 1% kann für die optischen Eigenschaften von heißem Argongas ausgegangen werden. Der Brechungsindex von Argon  $n_{\text{Ar}}$  bei der Laserwellenlänge  $\lambda$  kann mit der CAUCHY-Formel abgeschätzt werden:

$$n_{\text{Ar}} - 1 = A_1 \left( 1 + \frac{B_1}{\lambda^2} \right). \quad (3.42)$$

Die Konstanten  $A_1 = 27,91 \cdot 10^{-5}$  und  $B_1 = 5,6 \cdot 10^{-15} \text{m}^2$  für Argon unter Normalbedingungen ( $p = 101$  kPa und  $T = 273$  K) finden sich in [Born99], was einen Brechungsindex von  $n_{\text{Ar}} - 1 = 2,85 \cdot 10^{-4}$  ergibt. Gleichung 3.42 gilt für Gase dessen Brechungsindex sich nur geringfügig von 1 unterscheidet. In diesem Falle ändert sich auch der Brechungsindex proportional zur Teilchendichte, so daß aus dem Brechungsindex für Normalbedingungen der Brechungsindex für das ICP-Plasma abgeschätzt werden kann. Die Teilchendichte bei Normalbedingungen beträgt  $2,69 \cdot 10^{25} \text{m}^{-3}$  und im ICP-Plasma (bei  $T = 12000$  K und  $p = 500$  hPa)  $3 \cdot 10^{23} \text{m}^{-3}$ . Die

Dichte im Plasma ist um einen Faktor 88 kleiner als unter Normalbedingungen, was einem Brechungsindex von  $n_{\text{Ar}} - 1 = 3,24 \cdot 10^{-6}$  entspricht. Nach Gleichung 3.40 wird der einfallende Laserstrahl (unter einem Winkel von  $3,43^\circ$ ) um einen Betrag von  $0,001^\circ$  abgelenkt, dies entspricht einer relativen Winkelabweichung von weniger als  $0,03\%$ .

Der Brechungsindex  $n_{\text{Plas}}$  des Plasmas durch die Elektronen spielt in Plasmen mit hohem Ionisationsgrad eine tragende Rolle. Im folgenden wird dieser Einfluß für das ICP-Plasma (mit niedrigem Ionisationsgrad) abgeschätzt. Nach [Berg92] gilt

$$n_{\text{Plas}} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{e,\text{krit}}}} = \sqrt{1 - \frac{\omega_{\text{P}}^2}{\omega^2}}, \quad (3.43)$$

wobei  $n_e$  die Elektronendichte und  $\omega$  die Kreisfrequenz des Laserlichts sind. Die Plasmafrequenz  $\omega_{\text{P}}$  ist

$$\omega_{\text{P}} = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e}}, \quad (3.44)$$

mit der Elektronenmasse  $m_e$ . Als kritische Dichte  $n_{e,\text{krit}}$  wird die Elektronendichte bezeichnet, die man durch Einsetzen der Laserkreisfrequenz  $\omega$  in Gleichung 3.44 erhält. Bei maximalen Elektronendichten von  $5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$  im ICP-Plasma bei Wasserinjektion erhält man eine Plasmakreisfrequenz von  $3,99 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ . Mit der Laserkreisfrequenz  $\omega = 2\pi \frac{c}{\lambda} = 3,66 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$  ergibt sich nach Gleichung 3.43 ein maximaler Brechungsindex des Plasmas der sich um einen Betrag von  $0,5 \cdot 10^{-7}$  von dem in Luft unterscheidet. Der Einfluß des Plasmas ist somit bei der Fehlerbetrachtung der LDA-Messungen vernachlässigbar.

## 3.3 Leuchtpurmethode

### 3.3.1 Prinzip und experimenteller Aufbau

Mit einem ICCD-Kamerasystem ist eine direkte Überprüfung der mit LDA vergleichsweise indirekt gemessenen Geschwindigkeiten mit Hilfe der Vermessung von Leuchtschnecken möglich und gibt eine einfache Möglichkeit zur Messung von Partikeldurchmessern im Bereich von 5 bis 50  $\mu\text{m}$ . Bei der

Leuchtspurmethode wird der Laserstrahl direkt mit einer Zylinderlinse als Lichtblatt in die Reaktionszone fokussiert. Das Laserlicht wird an unverdampften Partikeln gestreut und unter einem Winkel von  $90^\circ$  wird das emittierte Streulicht mit dem Kamerasystem detektiert. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 3.13 dargestellt.

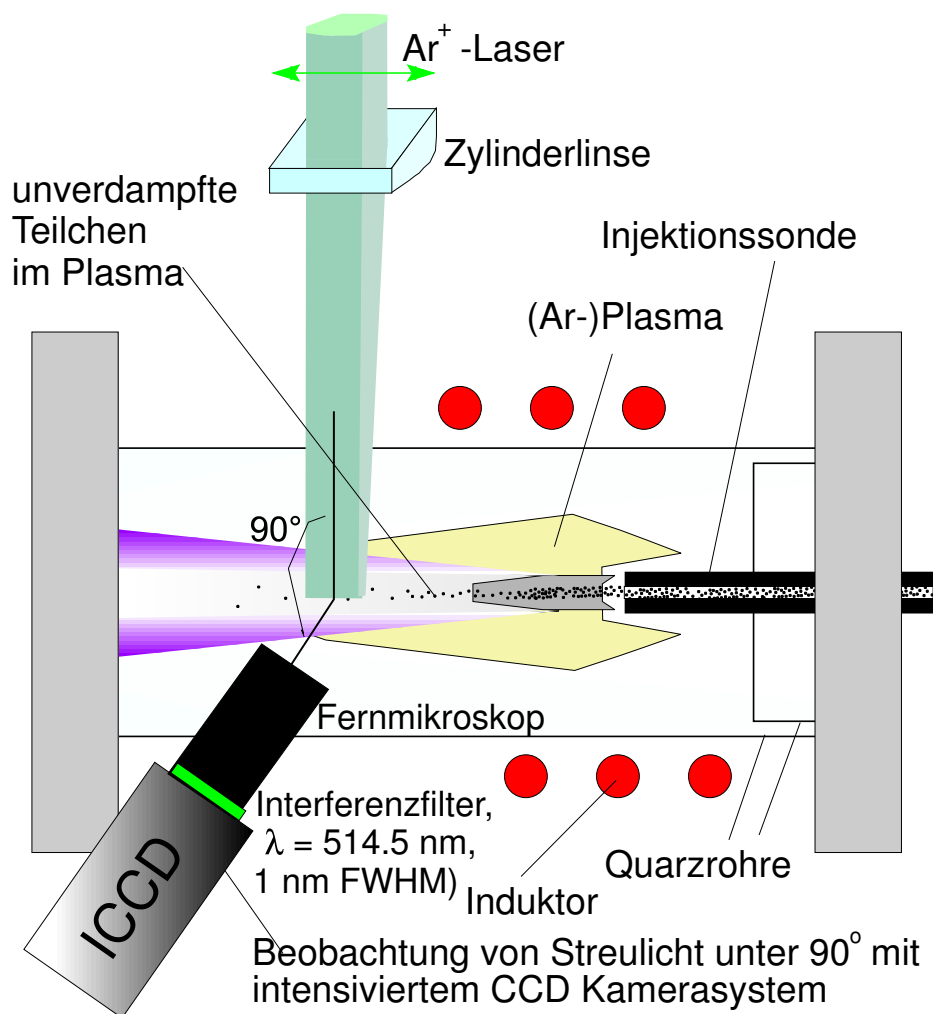
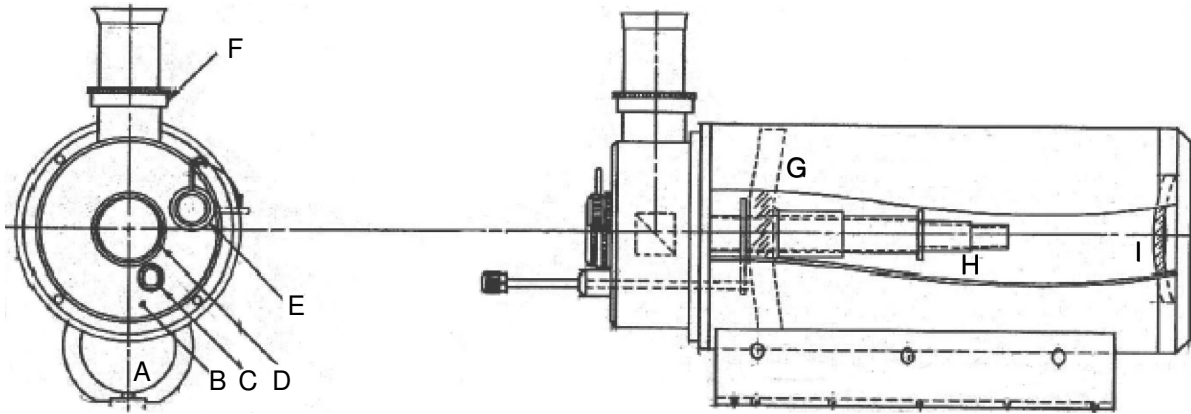


Abbildung 3.13: Aufbau zur Leuchtspurmessung.

Um eine gute Auflösung zu gewährleisten und die Möglichkeit zu haben, auch die Partikelgrößen anhand der Breite der Streifen zu bestimmen, wird zur Vergrößerung des Meßbereichs ein Fernmikroskop der Firma Questar verwendet, das in Abbildung 3.14 schematisch dargestellt ist. Mit diesem ist es möglich, bei einem Arbeitsabstand von 15 bis 35 cm, eine Auflösung von  $< 1 \mu\text{m}$  pro Pixel zu erzielen. Das Prinzip des Geräts entspricht dem eines Spiegelteleskops vom Typ Maksutov Cassegrain und gewährleistet somit auch genügend Lichtintensität am Detektor. Das einfallende Licht

wird am Spiegel G auf die Linsenzelle I fokussiert und von dort mit einem Korrekturspiegel auf die Blenden H und den anschließenden Detektor D (der ICCD-Kamera) geleitet. Vor der Kamera befindet sich ein schmalbandiges Filter bei der Laserwellenlänge von  $\lambda = 514,5 \text{ nm}$ .



**Abbildung 3.14:** Aufbau des Questar-Fernmikroskops QM100 [Ques00].

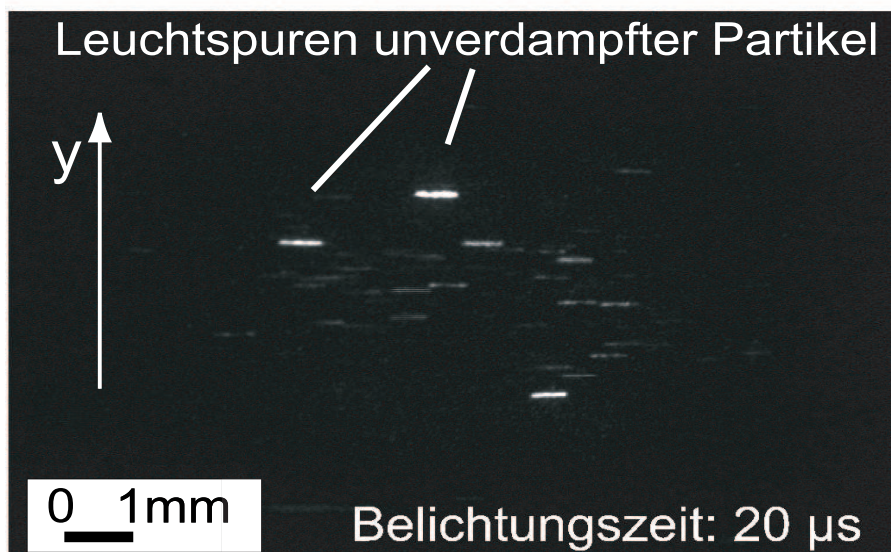
A	Halterung	F	Okular
B	Kontrollteil	G	Hauptspiegel und Fokusaufbau
C	Knopf zur Fokusjustage	H	Hauptrohr und Blendenaufbau
D	axialer Fotoanschluß	I	Korrekturspiegel und Linsenzelle
E	Knopf für Strahlteiler		

Die Laserleistung des Argon-Ionen Lasers ist für diese Anwendung mit 1,2 W durch die Auffächerung und vergleichsweise geringe Fokussierung zu schwach, so daß die theoretisch mögliche Partikelgrößendetektion bis zu einer Radius von  $1 \mu\text{m}$  nicht erreicht werden kann. Mit einem gepulsten Lasersystem können höhere Leistungen und somit auch ein besserer Kontrast erzielt werden, ein derartiges stand allerdings im Rahmen dieser Arbeit nicht zur Verfügung. Die Belichtungszeiten des CCD-Arrays sind so gewählt (einige  $\mu\text{s}$ ), daß auf den Bildern deutliche Spuren der Partikel erkennbar sind (Abbildung 3.15).

### 3.3.2 Auswertung der Leuchtpurbilder

Abbildung 3.15 zeigt ein Leuchtpurbild von Zirkondioxid-Partikeln, die mit dem Scheibenträger eingebracht wurden. Für diese Darstellung kam ein einfacher Schwellwertfilter zum Einsatz, der den Untergrund und schwache Leuchtsuren unterdrückt. Bei der Messung werden jeweils für eine Bedingung 100-1000 Bilder aufgenommen. Jedes einzelne Bild wird anschließend mit Hilfe eines selbst entwickelten Programms zur Bildaus-

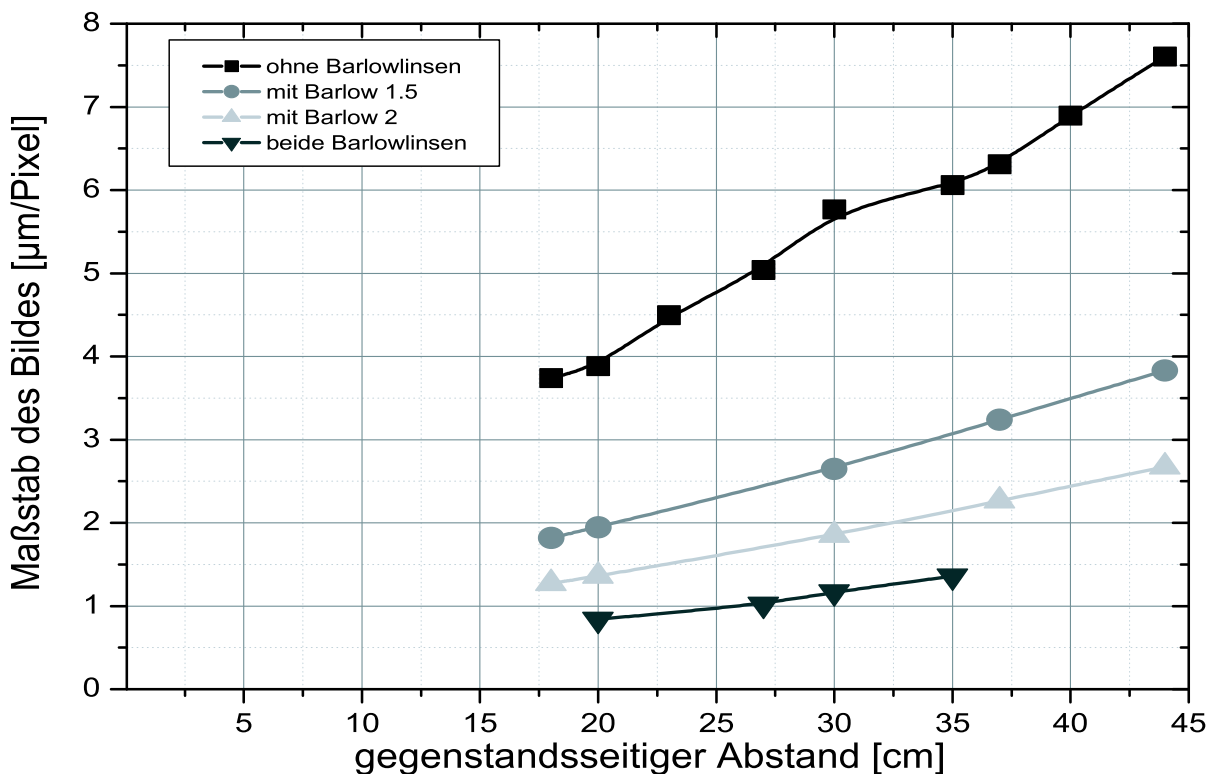
wertung analysiert, bei dem die Länge, Breite und Anzahl der Leuchtspuren erkannt werden. Das Programm besteht aus zwei Hauptkomponenten: einem Teil, der die aufgenommenen Bilder filtert und glättet und einem Teil zur Leuchtspurensuche und Auswertung. Der Programmteil zur Filterung beruht auf einem Bilderkennungsverfahren von AURICH [Auri98a],[Auri98b],[Auri99]. Diese Filterung ist nötig, da im wesentlichen Strahlung vom Plasma aber auch von Bit-Schwankungen des CCD-Chips zu stark verrauschten Bildern führen, in denen die Leuchtspuren schwer vor dem Untergrund erkennbar sind. Bei einem einfachen Schwellwertfilter – wie in Abbildung 3.15 angewendet – würden zu viele Informationen über schwächere Leuchtspuren und über die Breite verloren gehen. Die Filterung erfolgt statt dessen mit Hilfe einer Verkettung von nichtlinearen Gaußschen Filtern. Mit diesem Filterverfahren können die Leuchtspuren bei Erhaltung ihrer Kanten (also ohne Abschneiden wie bei einem Schwellwertfilter) vom Untergrund getrennt werden, wobei das Rauschen sogar höher als das eigentliche Signal sein kann.



**Abbildung 3.15:** Leuchtspuren von mit Laserlicht beleuchteten Partikeln unterschiedlicher Abmessung und Geschwindigkeit im Plasma nach Anwendung eines einfachen Schwellwertfilters.

Nach dieser Filterung kann ein binäres Bild erzeugt werden, welches nur noch 0 und 1 Zustände besitzt (unbeleuchtet bzw. beleuchtet, also Teil einer Leuchtspur). Im folgenden Programmteil wird das Binärbild nach den 1 Zuständen abgesucht, in dem das Bild zeilenweise durchlaufen wird. Nachdem das Bild komplett untersucht wurde erhält man eine Datei mit der Anzahl, der Länge, Breite und Position der gefundenen Leuchtspuren des unter-

suchten Bildes. So lassen sich auch Aussagen über die räumliche Verteilung der Partikelspuren treffen. Der Abstand des Fernmikroskops vom Gegenstand bestimmt die Vergrößerung. In Abbildung 3.16 ist diese Abhängigkeit für verschiedene Konfigurationen des Fernmikroskops aufgetragen, in denen zur verstärkten Vergrößerung Barlow-Linsen<sup>2</sup> in den Strahlengang eingebracht werden. Bei bekanntem Objekt-Abstand des Fernmikroskops ist somit aus der Bildgröße die Größe des Gegenstandes bekannt. Damit liefert die Breite der Leuchtspuren direkt den Durchmesser der Partikel und aus der Länge der Spuren kann über die Belichtungszeit die Geschwindigkeit berechnet werden. Die so gewonnen Informationen werden im Anschluß zusammengefaßt und statistisch ausgewertet, so daß letztlich eine mittlere Geschwindigkeit und Teilchengröße bestimmt wird.



**Abbildung 3.16:** Auswertung der Leuchtspuren: Abhängigkeit des Bild-Maßstabs vom gegenstandsseitigen Abstand bei Vermessung einer Eichskala (mm-Papier).

Die Belichtungszeit wird durch eine Torschaltung des CCD-Chips eingestellt und liegt typischerweise zwischen 1 und 100  $\mu$ s. Dadurch können auch schnelle Fluktuationen im Teilchenfluß erfaßt werden.

<sup>2</sup>Eine Barlow-Linse ist eine negativ, zerstreuend wirkende Linse, die in der Nähe des Brennpunktes eines Teleskops eingebaut wird. Die negative Barlow-Linse verschiebt den Brennpunkt und verlängert damit die Brennweite des Fernrohrs.

# Kapitel 4

## Modellierung

Zur Modellierung werden zum einen die Plasmaeigenschaften (Dichte- und Temperaturverteilungen sowie Gasgeschwindigkeiten im Plasma) mit Hilfe eines kommerziell erhältlichen Fluidodynamikprogramms (CFD-ACE+) [CFD00] berechnet.

Zum anderen wird das Verhalten der Partikel beim Durchgang durch die heiße Plasmazone simuliert.

Schwerpunkt der in dieser Arbeit entwickelten Simulation ist die Partikelgrößenänderung (Ablation) beim Plasmadurchgang.

### 4.1 Modellierung der Plasmaeigenschaften

Der Fluidynamik-Code CFD-ACE+ basiert auf der simultanen Lösung von Kontinuitätsgleichung, Impuls- (Navier-Stokes-Gleichung) und Energieerhaltung in Verbindung mit den Maxwellgleichungen für die elektromagnetischen Felder.

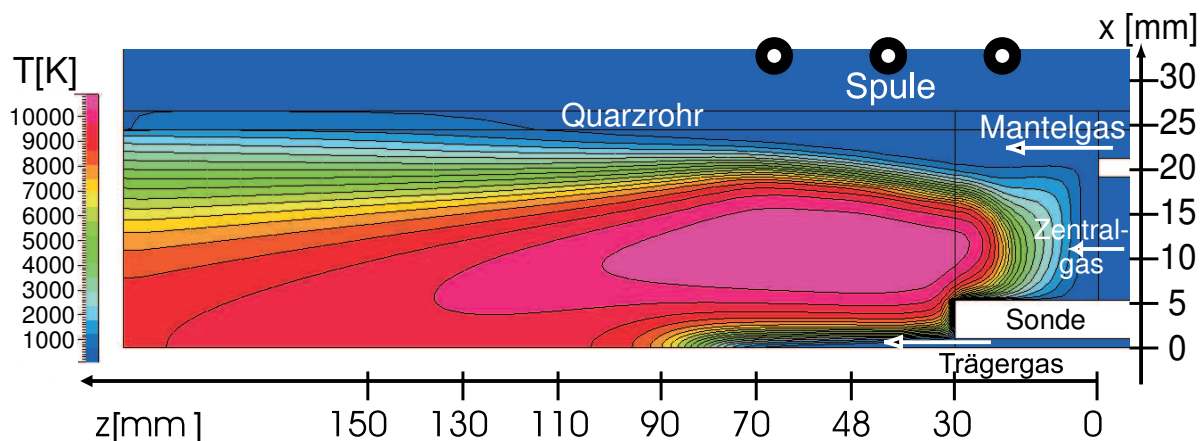
Einige Voraussetzungen sind:

- zweidimensionale, axialsymmetrische Strömungs-, Dichte- und Temperaturfelder,
- zweidimensionale elektromagnetische Felder in Vektorpotential-Formulierung mit dem Spulenstrom als Randbedingung,

- stationäre Strömung,
- Vernachlässigung der Gravitationskraft (des Auftriebs),
- inkompressible Strömung,
- lokales thermodynamisches Gleichgewicht (LTG),
- Energieverluste durch Strahlung des Plasmas werden berücksichtigt.

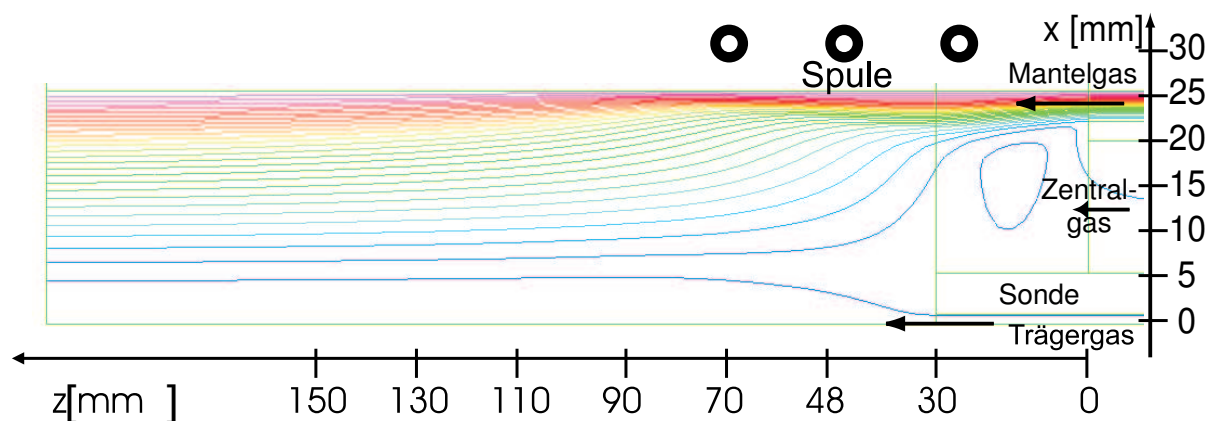
#### 4.1.1 Ergebnisse der Plasmamodelle: Temperaturverteilung, Geschwindigkeitsverteilung und Dichten

In Abbildung 4.1 ist das Temperaturfeld, in Abbildung 4.2 das Stromlinienfeld dargestellt, wobei die Plasmaachse jeweils am unteren Bildrand liegt und die radiale Koordinate  $x$  zur besseren Übersichtlichkeit um den Faktor 2 gestreckt wurde. Der Gasstrom verläuft von rechts nach links. Das Temperaturfeld weist Maximaltemperaturen bis 11000 K auf, die zum Gasauslaß hin abfallen. Von der Sonde ausgehend, erstreckt sich ein kalter Kanal ins Plasma hinein, in dem die Temperaturen erst nach 40 mm auf über 5000 K steigen.



**Abbildung 4.1:** Temperaturfeld eines Plasmas mit 70 slm Mantelgas, 5 slm Zentralgas, 3 slm Trägergas, 500 hPa Druck und 8 kW eingekoppelte HF-Leistung [Schu03].

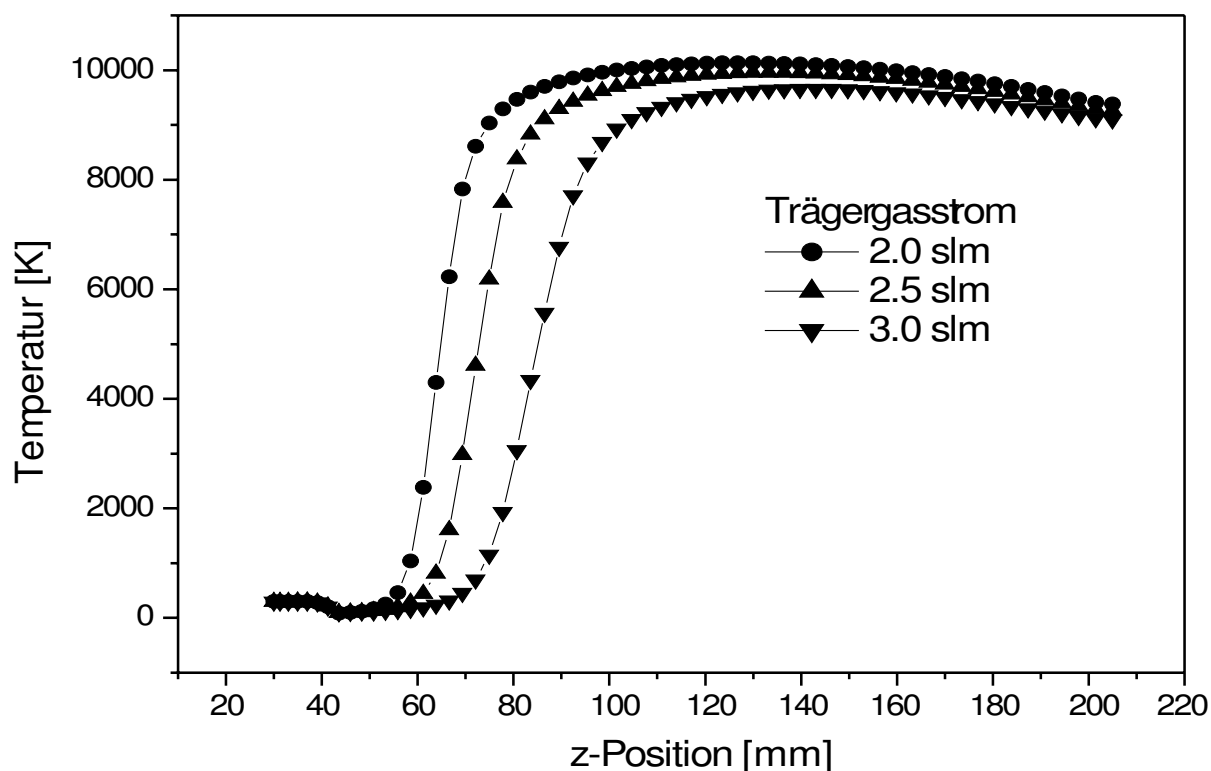




**Abbildung 4.2:** Stromlinienfeld eines Plasmas mit Bedingungen wie in Abbildung 4.1 [Schu03].

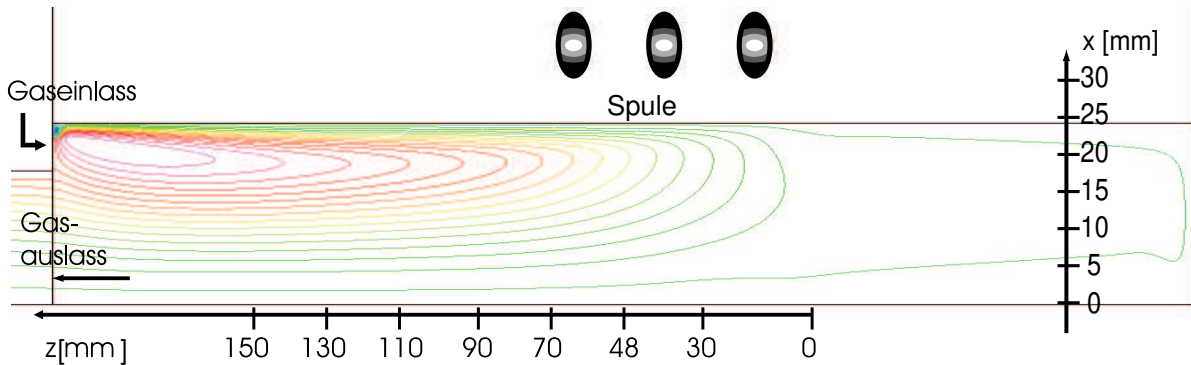
Im Strömungsfeld ist der für induktiv gekoppelte Plasmen dieser Geometrie typische Rückwirbel zu erkennen, der jedoch bei der gewählten Sondenposition die Injektion der Partikel nicht behindert.

Da sich der in den Abbildungen 4.1 und 4.2 eingezeichnete Trägergasfluß für die Verdampfung von Partikeln als entscheidend erwiesen hat, wurden Modellrechnungen mit verschiedenen Trägergasflüssen durchgeführt (siehe Abbildung 4.3).

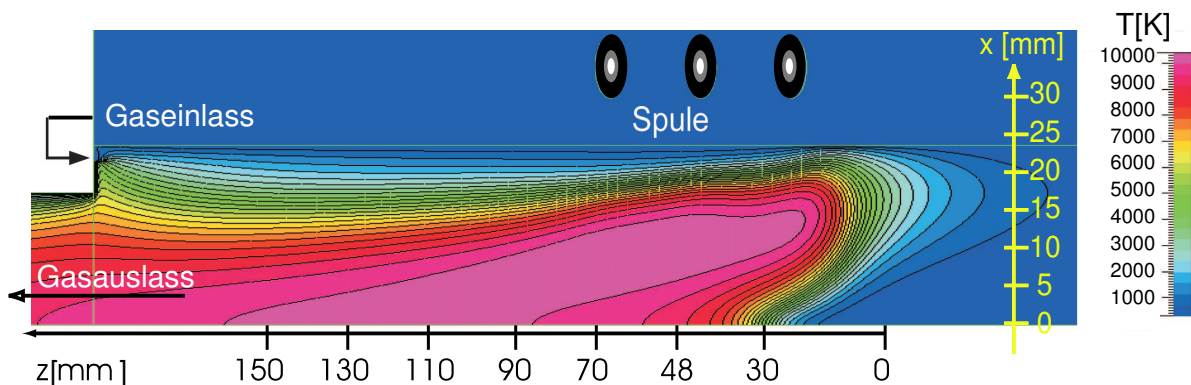


**Abbildung 4.3:** Axialer Temperaturverlauf für  $r = 0$  als Funktion des Trägergasflusses, sonstige Bedingungen wie in Abbildung 4.1 [Schu03].

Bei erhöhtem Trägergasstrom dringt das kalte Gas tiefer ins Plasma ein und verlängert den Injektionskanal, so daß injizierte Partikel erst später in die heiße Zone gelangen. Der Wegunterschied zwischen Gasströmen von 2 slm und 3 slm beträgt etwa 20 mm. Geringe Trägergasflüsse sind demnach für eine vollständige Verdampfung der Partikel vorteilhaft.



**Abbildung 4.4:** Stromlinienfeld der Umkehrströmung mit 100 slm Plasmagasfluß, 6,6 kW Leistung, 1000 hPa, ohne Trägergas [Schu03].



**Abbildung 4.5:** Temperaturfeld der Umkehrströmung, Bedingungen wie in Abbildung 4.4 [Schu03].

Mit dem Strömungsmodell wurde auch die in Abschnitt 2.1.6 beschriebene Umkehrströmung modelliert. In Abbildung 4.4 ist das Stromlinienfeld zu sehen, wobei die Plasmaachse am unteren Bildrand liegt und die radiale Koordinate  $x$  zur besseren Übersichtlichkeit um den Faktor 2 gestreckt wurde. Die Gasströmung verläuft am Rand des Entladungsrohres entlang in Richtung Induktionsspule, fließt dort in die Mitte und verläßt die Entladung durch den linken Ausfluß. Es ist erkennbar, daß bei Injektion von Partikeln von rechts diese von der Strömung mitgenommen werden können und kein Wirbel die Injektion behindert. Andererseits ist nahe der Einströmöffnung ein Wirbel vorhanden, der Partikel aus dem

zentralen Bereich nach außen in den kalten Gasstrom treibt, der sie wieder zurück in die heiße Zone transportiert. Dies führt im Experiment zu einer Verteilung von verdampftem Material im gesamten Plasmabereich und zur Ablagerung von Pulver an der Wand des Entladungsrohres. Dieses Verhalten ist unerwünscht, da es die optische Beobachtung des Plasmas behindert. Im Temperaturfeld (Abbildung 4.5) ist zu erkennen, daß das einströmende Gas den Plasmarand auf unter 1000 K abkühlt. Allerdings kommt das Plasma im Bereich der rechten Spulenwindung in die Nähe der Wand, da der größte Teil der Gasmenge dort schon in die Mitte geströmt ist. An dieser Stelle können im Experiment auch Beschädigungen auftreten. Die Ausströmöffnung ist ebenfalls eine Stelle mit hoher thermischer Belastung, weswegen dort im Vergleich zur konventionellen Strömung die Kühlung verstärkt wurde.

Eine ausführliche Betrachtung der Modellierung mit dem Programmcode CFD-ACE findet sich in der Arbeit von SCHUBERT [Schu03].

## 4.2 Modellierung des Partikelverhaltens

Im folgenden wird das Verhalten der ins Plasma eingebrachten Pulver untersucht. Zur Berechnung von Teilchentrajektorien und -temperaturen sowie deren Verdampfung sind der Wärmestrom und die auf die Teilchen wirkenden Kräfte während der gesamten Verweildauer im Plasma zu ermitteln. Bei der Berechnung des Wärmeübergangs auf die Partikel in einem Plasma sind neben Diffusion und Konvektion die Strahlung der Pulverteilchen und der Knudseneffekt zu berücksichtigen. Der Knudseneffekt, mit dem die Störung des lokalen thermodynamischen Gleichgewichts um das Partikel berücksichtigt wird, tritt beim Wärmeübergang von verdünnten Gasen auf Teilchen mit einem Durchmesser, der im Größenbereich der mittleren freien Weglänge der umgebenen Gasmoleküle liegt ( $d_p \geq \lambda_{mfW}$ ), auf.

Das hier vorgestellte Modell zur Berechnung des Partikelverhaltens im Plasma geht im wesentlichen auf Arbeiten von PROULX [Prou85] und CHEN [Chen83] zurück. Bei der Modellierung der Partikeltrajektorien wird auf den bereits im Institut bestehenden Code von FERFERS [Ferf95] zurückgegriffen. Im FERFERS Code wurde der Teil vollständig erneuert, der die Partikelheizung betrifft, wobei jetzt der Knudseneffekt bei der Wärmeübertragung berücksichtigt wird.

### 4.2.1 Bestimmung der Partikeltrajektorien

Die Trajektorien der axial eingebrachten Partikel resultieren aus deren Bewegungsgleichungen. Durch das strömende Plasmagas wird eine Reibungskraft verursacht, welche die Bewegung beeinflusst. Die Geschwindigkeiten, die im vorigen Abschnitt berechnet wurden, gehen nun in die Betrachtungen ein. Die Bewegungsgleichungen haben in Zylinderkoordinaten folgende Form [Ferf95]:

$$\frac{du_{p,z}}{dt} = \frac{3}{4} C_D \frac{\varrho}{\varrho_p d_p} (u_z - u_{p,z}) U_R, \quad (4.1)$$

$$\frac{du_{p,r}}{dt} = \frac{3}{4} C_D \frac{\varrho}{\varrho_p d_p} (u_r - u_{p,r}) U_R. \quad (4.2)$$

Dabei werden die Partikelgeschwindigkeitskomponenten mit  $u_{p,z}$  und  $u_{p,r}$ , die Plasmageschwindigkeitskomponenten mit  $u_z$  und  $u_r$ , die Massendichte der Partikel mit  $\varrho_p$ , die Plasmadichte mit  $\varrho$  sowie der Partikeldurchmesser mit  $d_p$  bezeichnet.  $U_R$  ist die Relativgeschwindigkeit zwischen Plasma und Partikel

$$U_R = \sqrt{(u_r - u_{p,r})^2 + (u_z - u_{p,z})^2}. \quad (4.3)$$

$C_D$  ist der Reibungskoeffizient, der von der Reynoldszahl  $Re_p$  der Partikel abhängt. Dieser wird in [Boul78] für Partikel im HF-Plasma wie folgt abgeschätzt:

$$C_D = \begin{cases} \frac{24}{Re_p} & Re_p < 0.2 \\ \frac{24}{Re_p} \left(1 + \frac{3}{16} Re_p\right) & 0.2 \leq Re_p \leq 2 \\ \frac{24}{Re_p} \left(1 + 0.11 Re_p^{0.81}\right) & 2 \leq Re_p \leq 20 \\ \frac{24}{Re_p} \left(1 + 0.19 Re_p^{0.13}\right) & 20 < Re_p \end{cases}, \text{ mit } Re_p = \frac{\varrho U_R d_p}{\mu}. \quad (4.4)$$

### 4.2.2 Bestimmung der Partikeltemperaturen

Für ein Partikel in einem homogenen Wärmebad gilt das Fouriersche Gesetz der Wärmeleitung mit der Randbedingung, daß die Gastemperatur an der Oberfläche des Teilchens gleich der Oberflächentemperatur des Teilchens  $T_p$  und weit entfernt gleich der Plasmatemperatur  $T$  ist. Der Betrag

der auf das Teilchen übertragenen Leistung  $Q$  beträgt dann:

$$Q = \pi d_p^2 k(T_{\text{av}}) \left| \frac{dT}{dr} \right|, \quad Q = \text{const.}, \quad r \geq d_p/2, \quad (4.5)$$

mit der Wärmeleitfähigkeit  $k(T_{\text{av}})$  bei einer mittleren Temperatur der Übergangsschicht zwischen der Teilchentemperatur  $T_p$  und der Plasmatemperatur  $T$ :

$$T_{\text{av}} = \frac{(T + T_p)}{2} \quad (4.6)$$

und einer Temperaturdifferenz  $\Delta T$  zwischen Plasma und Partikel:

$$\Delta T = T - T_p. \quad (4.7)$$

In verdünnten Gasen spielt bei Wärmeübergangseffekten der Knudsenefekt eine Rolle, so daß für kleine Partikel Gleichung 4.5 nicht mehr angewendet werden kann. Mit verdünnt ist gemeint, daß die mittlere freie Weglänge  $\lambda_{\text{mfW}}$  der Gasmoleküle groß ist im Vergleich zum Teilchendurchmesser  $d_p$  (charakteristische Länge) [Spri95]. Als Maß für die Beeinflussung wählt man daher die Knudsenzahl

$$Kn = \frac{\lambda_{\text{mfW}}}{d_p}. \quad (4.8)$$

Man unterscheidet vier Bereiche:

$Kn < 10^{-3}$	$Kn < 10^{-3}$	kontinuierlicher Bereich	
$10^{-3} < Kn < 10^{-1}$	$Kn < 10^{-1}$	Temperatursprung	(4.9)
$10^{-1} < Kn < 10$	$Kn < 10$	Übergangsbereich	
$10 < Kn$	$Kn$	freier Molekülstrom.	

Bei der Pulvererwärmung im IC-Plasma können die Knudsenzahlen  $Kn$  leicht abgeschätzt werden. Die mittlere freie Weglänge von Molekülen in einem einatomigen Gas berechnet sich nach [Berg90] zu

$$\lambda_{\text{mfW}} = \frac{1}{\sqrt{2} 4\pi n(T) r_{\text{Argon}}^2}, \quad (4.10)$$

mit dem Atomradius von Argon  $r_{\text{Argon}} = 96 \text{ pm}$  und der temperaturabhängigen numerischen Teilchendichte  $n(T)$ , die sich aus der Massendichte bestimmen läßt:

$$n(T) = \frac{N_A}{V_m} \cdot \frac{\varrho(T)}{\varrho(300 \text{ K})} = 2,69 \cdot 10^{25} \cdot \frac{\varrho(T)}{\varrho(300 \text{ K})} \text{ m}^{-3}, \quad (4.11)$$

$N_A$  ist die Avogadrokonstante und  $V_m$  das molare Normvolumen. Für die Massendichte von Argon wird die in [Yosh77] verwendete Interpolationsformel:

$$\varrho \left[ \frac{\text{kg}}{\text{m}^3} \right] = \frac{4.868 \cdot 10^2}{T[\text{K}]} - 3.673 \cdot 10^{-7} \cdot T[\text{K}] \quad (4.12)$$

angenommen. Geht man von maximal auftretenden Temperaturen von 10.000 K im Plasma aus, so ergeben sich bei Partikeldurchmessern zwischen 20 und 2  $\mu\text{m}$  Knudsenzahlen zwischen 0,01 und 10 (z.B. 20  $\mu\text{m}$ -Partikel bei  $T = 10.000 \text{ K}$ :  $Kn = 0,33$ ).

Im kontinuierlichen Bereich, in dem die Anzahl der Stöße zwischen den Gasmolekülen groß ist im Vergleich zu den Stößen zwischen Molekülen und Partikeln, kann der Knudseneffekt vernachlässigt werden und es gilt Gleichung 4.5. Für höhere Knudsenzahlen ist der Knudseneffekt zu berücksichtigen, bei dem das Wärmeleitungsgesetz 4.5 mit einem Korrekturfaktor  $K_K$  in der Form:

$$Q_K = K_K \cdot 2\pi d_p \cdot k(T_{\text{av}}) \Delta T \quad (4.13)$$

verwendet wird. Nach [Chen83] kann bei einer Knudsenzahl von  $Kn = 0,33$  die Berechnung des Wärmeübergangs mit der Temperatursprung-Näherung erfolgen. Der Knudsenkorrekturfaktor  $K_K$  in Gleichung 4.13 ist in diesem Fall für sphärische Teilchen:

$$K_K = \frac{1}{1 + \frac{2-a}{a} \frac{\gamma}{1+\gamma} \frac{4}{Pr_s} Kn}. \quad (4.14)$$

Dieser wird durch die Prandtlzahl  $Pr_s$  an der Oberfläche des Partikels gegeben durch

$$Pr_s = \frac{\mu(T)c_p(T)}{k(T)}, \quad (4.15)$$

die Knudsenzahl  $Kn$  und  $\gamma = c_p/c_v = 1 + 2/f = 1,66$  (für Argon) bestimmt ( $c_p$  bzw.  $c_v$  bezeichnet die spezifische Wärmekapazität des Argons bei konstantem Druck bzw. Volumen, wobei im folgenden nur noch mit  $c_p$  gerechnet wird,  $f$  ist die Anzahl der Freiheitsgrade eines Argonatoms). Für die Berechnung wird noch der Wert des Akkomodationskoeffizienten  $a$  benötigt. In der Literatur gibt es keine eindeutige Angaben für  $a$  unter Plasmabedingungen, aber es finden sich einige Theorien und Abschätzungen wie z.B. in [Devi65]. Allgemein wird ein Wert von  $a \approx 0,8$

[Chen83] angenommen. Ein Vergleich der durch Modellierung ermittelten Dichten von verdampftem Zirkonium mit den experimentellen Ergebnissen, die durch die Spektroskopie gewonnen werden können [Schu03], liefert sinnvolle Ergebnisse. Für  $a \approx 0,9$  sind die experimentellen und berechneten Werte weitgehend identisch. auf Grund der geringen Partikelgrößen ist die Annahme einer homogenen Partikeltemperatur gerechtfertigt, bei größeren Partikeln herrscht hingegen durch die schlechte Wärmeleitfähigkeit des Zirkoniumdioxids ein starker Temperaturgradient. Die Wärmeleistung, die zur Aufheizung, Aufschmelzung und Verdampfung wirksam werden kann, ist um die Leistung  $Q_S$  vermindert. Diese wird in Form von Schwarzkörperstrahlung abgegeben

$$Q = Q_K - Q_S, \quad (4.16)$$

$$Q_S = \pi d_p^2 \sigma \varepsilon (T_p^4 - T_{\text{Wand}}^4). \quad (4.17)$$

Dabei bezeichnet  $\varepsilon$  den Absorptionsgrad der Partikeloberfläche,  $\sigma$  die STEFAN-BOLTZMANN-Konstante und  $T_{\text{Wand}}$  die Temperatur der Umgebung (da das Plasma optisch dünn ist, wird hier die Temperatur der Quarzwand des Entladungsrohres, also etwa Zimmertemperatur von 300 K, angenommen). Ein Teilchen mit einer Masse  $m_p$  und einer spezifischen Wärmekapazität  $c_p$  wird mit der Wärmeleistung

$$\frac{dT_p}{dt} = \frac{Q}{m_p c_p} \quad (4.18)$$

aufgeheizt. Ist die Partikeltemperatur gleich der Schmelztemperatur, dann wird  $Q$  zum Aufschmelzen des Teilchens verbraucht. Dabei ändert sich  $X_p$ , der Anteil des geschmolzenen Materials

$$\frac{dX_p}{dt} = \frac{Q}{m_p H_m}, \quad (4.19)$$

wobei  $H_m$  die Schmelzenthalpie bezeichnet. Am Verdampfungspunkt geschieht ein ähnlicher Vorgang, nur daß das verdampfte Volumen  $V_p$  in die Gasphase übergeht und dem Partikel nicht mehr angehört. Durch diesen Prozeß verkleinert sich der Teilchendurchmesser  $d_p$  gemäß:

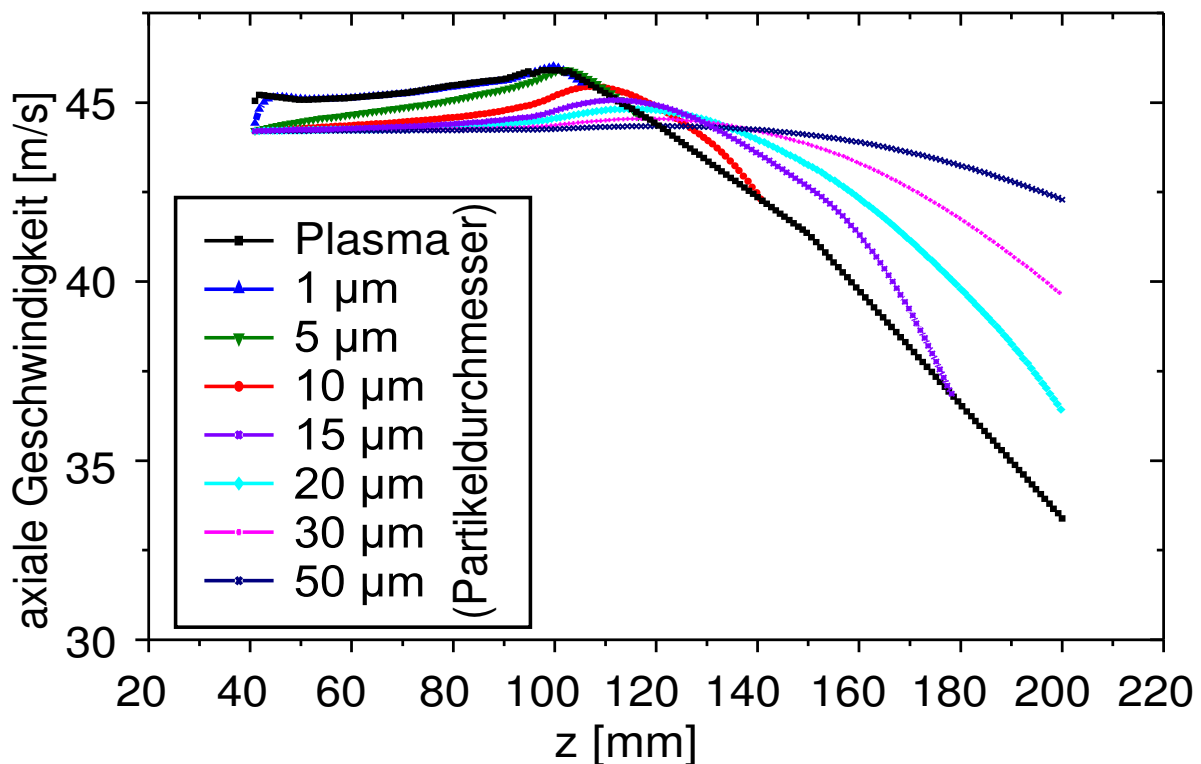
$$\frac{dV_p}{dt} = \frac{Q}{-\rho_p H_v} \Rightarrow \frac{d(d_p)}{dt} = \frac{Q}{-\frac{1}{2}\pi \rho_p d_p^2 H_v}, \quad (4.20)$$

mit der Verdampfungsenthalpie  $H_v$ .

Für die numerischen Berechnungen werden zuerst die Startwerte von Ort, Geschwindigkeit, Temperatur und Durchmesser des Partikel festgelegt sowie dessen Materialeigenschaften bestimmt. Mit Hilfe der vorgestellten Gleichungen kann die Änderung dieser Größen ausgewertet werden, wenn in diskreten Zeitschritten vorgegangen wird.

### 4.2.3 Ergebnisse

Da mit Hilfe der LDA und der Leuchtspurmethode nur die Geschwindigkeit der Partikel, nicht aber die des Plasma- bzw. Gasstroms direkt gemessen werden kann, wird auch der Einfluß der Größe von Zirkoniumpartikeln auf deren Folgeverhalten im Plasma studiert. In Abbildung 4.6 sind die Geschwindigkeiten des Plasmas und von Partikeln unterschiedlicher Größen dargestellt.



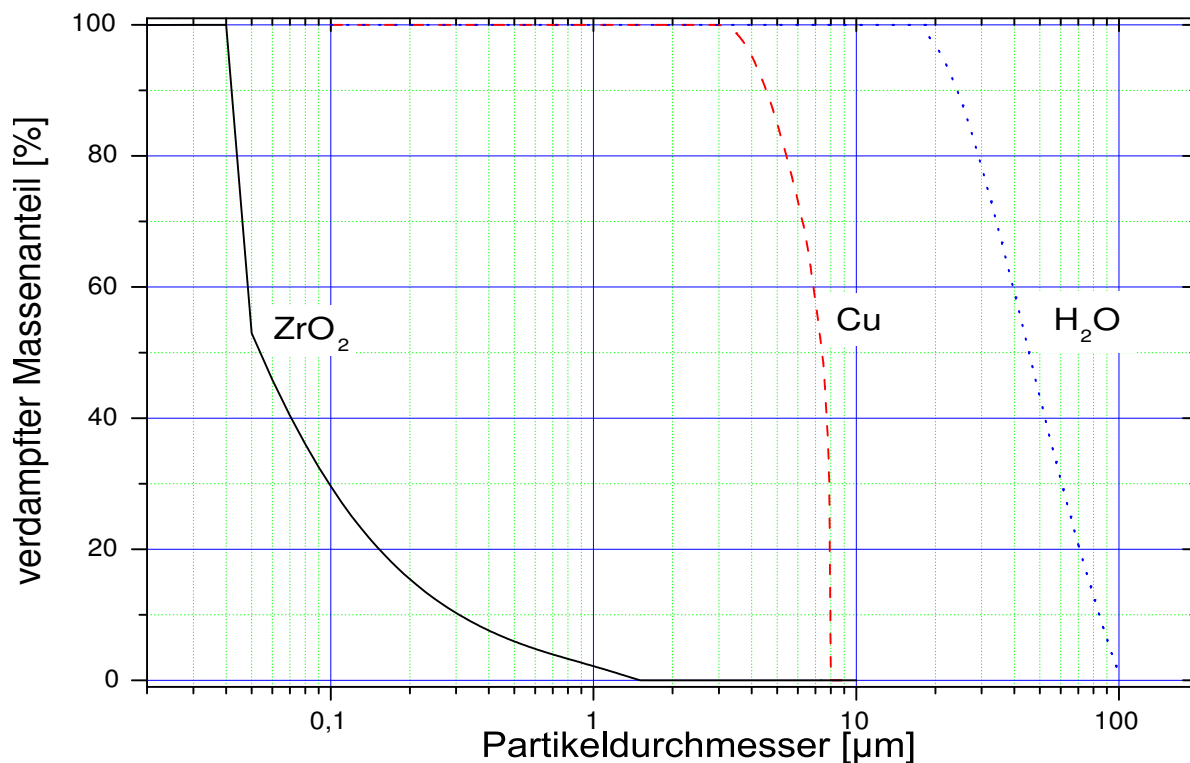
**Abbildung 4.6:** Simulation der Geschwindigkeiten des Plasmas und von eingebrachten  $ZrO_2$ -Partikeln verschiedener Teilchengrößen (zentrale Injektion, 600 hPa Druck, 5 slm Trägergasfluß).

Die Geschwindigkeiten der Partikel mit einem Durchmesser unter  $15 \mu m$  sind nahezu gleich der des Plasmas. Größere Teilchen weichen jedoch auf-



grund ihrer Trägheit von dieser Geschwindigkeit merklich ab.

Im folgenden wird, mit Hilfe eines neu entwickelten Programmteils zur Partikelverdampfung, das Verdampfungsverhalten von Zirkondioxid untersucht. Die Ergebnisse in Abbildung 4.7 zeigen, daß bei den im Experiment vorliegenden Plasmabedingungen<sup>1</sup> lediglich 2,2% von 1  $\mu\text{m}$  Zirkondioxidpartikeln verdampfen können!

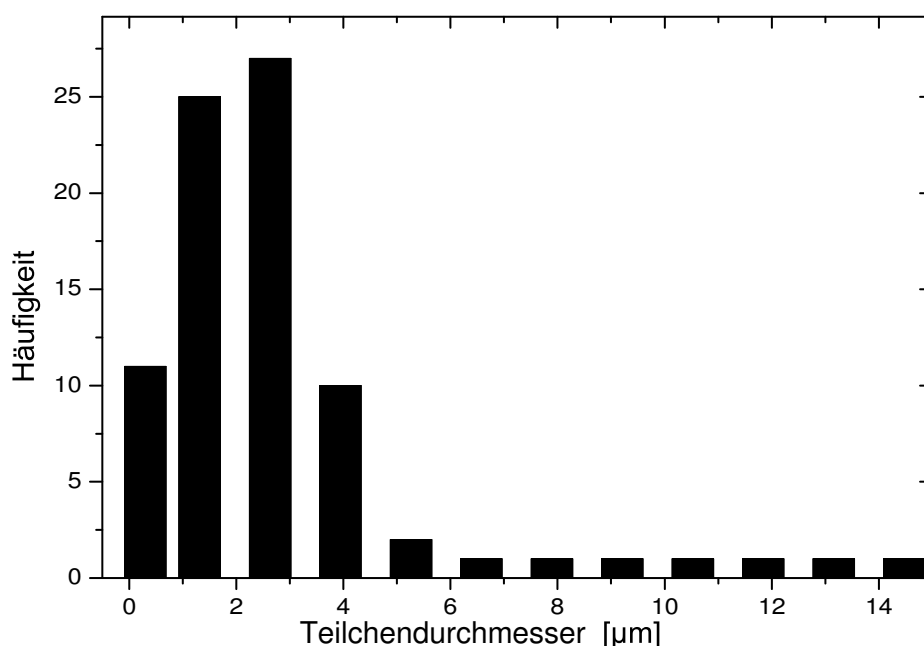


**Abbildung 4.7:** Berechnung zur Partikelverdampfung: Vergleich des verdampften Massenanteils für Zirkoniumdioxid ( $\text{ZrO}_2$ ), Kupfer ( $\text{Cu}$ ) und Wasser ( $\text{H}_2\text{O}$ ) bei Variation der Partikelgröße.

Die Simulation bestätigt, wie schwierig die Verdampfung des  $\text{ZrO}_2$ -Materials bei den gegebenen Versuchsbedingungen ist. Eine vollständige Verdampfung kann demnach bei den gleichen Einstellungen nur bei Partikelgrößen bis zu 30 nm erzielt werden. Größere  $\text{ZrO}_2$  Teilchen verdampfen nicht, sondern schmelzen je nach Partikelgröße gänzlich auf oder (auf Grund der schlechten Wärmeleitfähigkeit) nur an der Oberfläche. Insbesondere am Ende der Plasmaflamme sind die Energieverluste nach Gleichung 4.16 durch Schwarzkörperstrahlung der Partikel besonders groß, so daß die vom Plasma auf die Partikel übertragene Wärme nahezu vollständig

<sup>1</sup>Trärgasfluß: 5 slm, Druck: 600 hPa, Zentralgas: 10 slm, Mantelgas: 60 slm

abgestrahlt wird. Im folgenden wird die für die Experimente verwendete Partikelgrößenverteilung berücksichtigt, wobei durch die Förderung mit dem Fließbettförderer nahezu vollständig deagglomeriertes Pulver<sup>2</sup> entsteht (in Abbildung 4.8 mit einem Lichtmikroskop nach der Förderung untersucht). Auf Grundlage dieser Verteilung ergibt sich insgesamt eine Verdampfung des eingebrachten  $\text{ZrO}_2$  von lediglich 0,018%. Dieser sehr geringe Wert stimmt mit der von der Spektroskopie quantitativ bestimmten (siehe [Schu03]) verdampften Pulvermenge überein. Die Modellrechnung bestätigt die experimentell gewonnene Erkenntnis, daß das eingebrachte Pulver nur zu einem geringen Bruchteil im Plasma verdampfen kann.

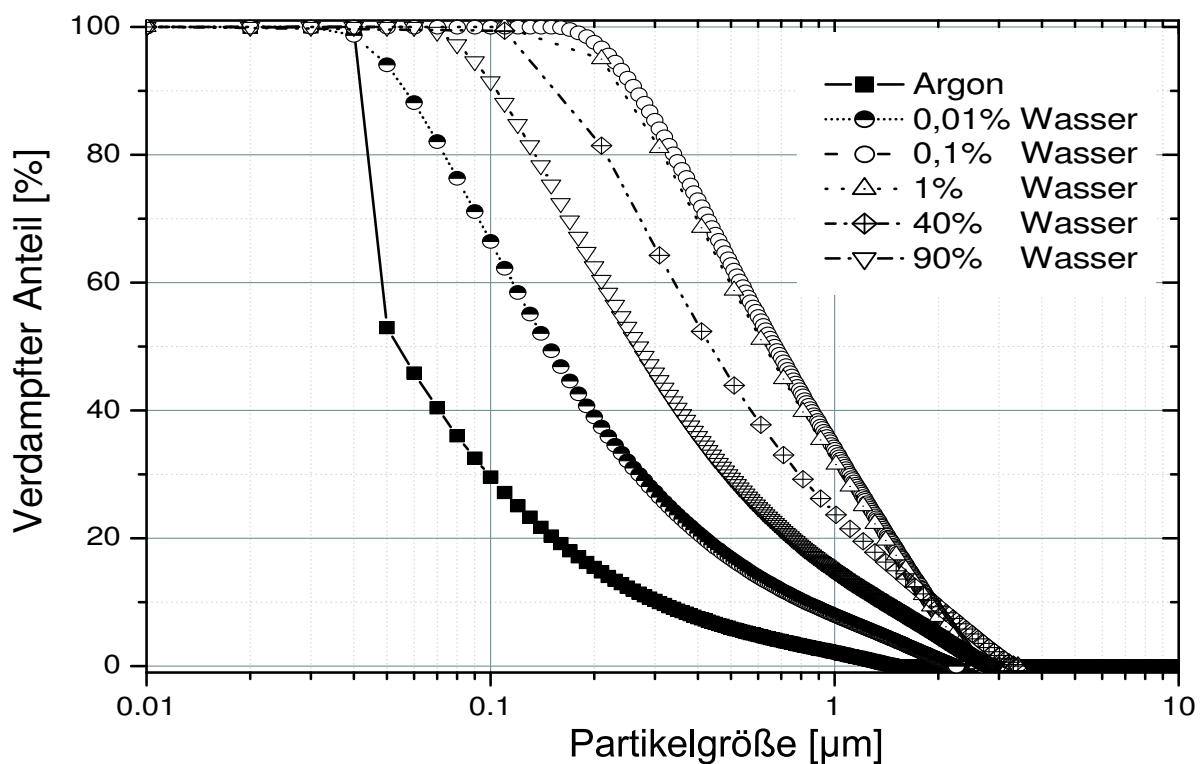


**Abbildung 4.8:** Mikroskopisch vermessene Partikelgrößenverteilung von deagglomeriertem (durch Förderung)  $\text{ZrO}_2$  Pulver.

Zum Vergleich wurden die Rechnungen in Abbildung 4.7 auch mit Kupfer und Wasser durchgeführt. Es zeigt sich, daß Kupferpartikel bis zu  $3\ \mu\text{m}$  Partikeldurchmesser vollständig verdampfen, wobei die Verdampfung bei  $8\ \mu\text{m}$  einsetzt. Bei Wasserinjektion verdampft ein  $20\ \mu\text{m}$  Tröpfchen vollständig und ab einer eingebrachten Tröpfchengröße von  $100\ \mu\text{m}$  setzt der Verdampfungsprozeß ein. Beide theoretisch gewonnenen Ergebnisse decken sich mit experimentellen Beobachtungen und den Untersuchungen zur Verdampfung von Kupfer in [Buch98] und bestätigen somit die Modellrechnungen.

<sup>2</sup>Zirkoniumdioxid - Yttrium stabilisiert; Firma CERAC, Milwaukee, USA

Im Kapitel über Fördermethoden 2.2 wurden verschiedene Möglichkeiten zur Einbringung von wäßrigen Lösungen und Suspensionen und damit Wasserstoff in die Entladung vorgestellt. Im folgenden wird numerisch untersucht, welchen Einfluß dies auf die Verdampfung von Zirkoniumdioxid hat. Zur Verbesserung der Verdampfung des Zirkoniumdioxids wird nun durch Zugabe von Wasserstoff, bzw. Wasser, welches nach Abbildung 4.7 in der heißen Plasmazone verdampft und dissoziiert, die Wärmeleitfähigkeit des Gases und somit die auf die Partikel übertragene Wärmemenge erhöht. Dieser Einfluß wird im folgenden mit Hilfe des Modells zur Partikelverdampfung untersucht. Für verschiedene Wasserkonzentrationen ist der Einfluß auf die Verdampfung in Abbildung 4.9 aufgetragen.

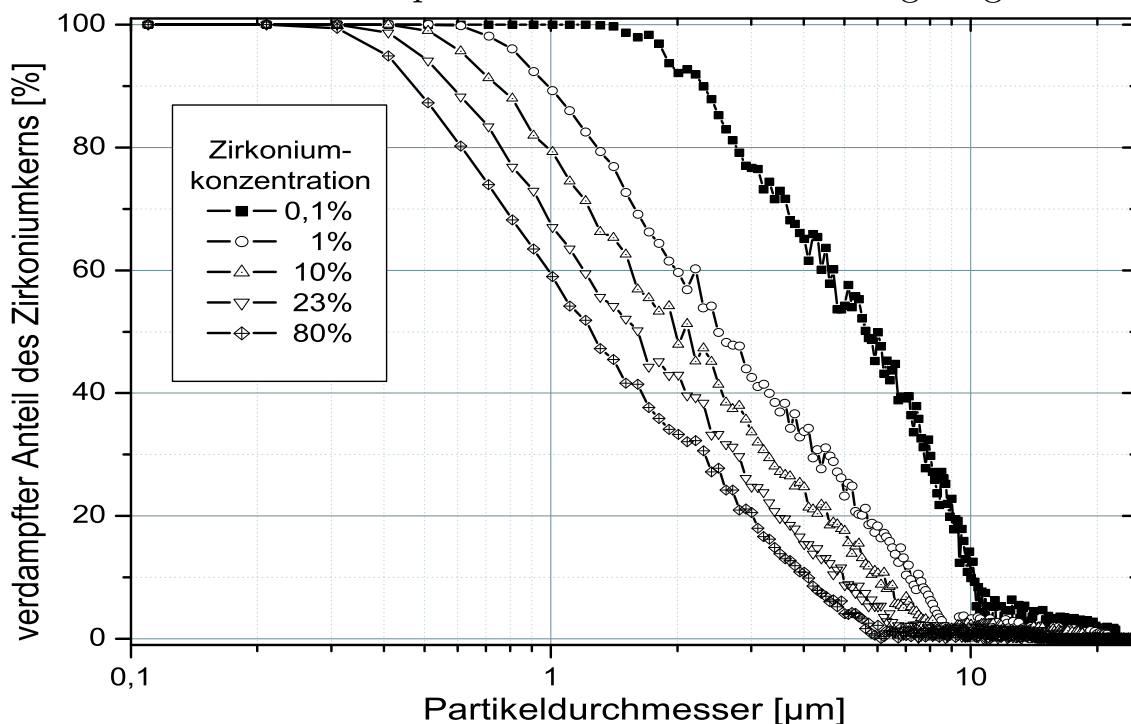


**Abbildung 4.9:** Modellrechnung: Verbesserte Verdampfung von  $ZrO_2$  Pulver durch Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit bei Zugabe von Wasser im Plasma.

Kleine Wassermengen im Plasma (bis ca. 1%) verbessern die Verdampfung merklich, so daß gegenüber dem Fall in reinem Argon bei einer Wasserkonzentration von z.B. 1%  $ZrO_2$  Partikel mit einem Durchmesser von 100 nm vollständig verdampfen und von einem 1  $\mu m$  Partikel bereits 1/3 der Masse verdampft wird.

Für die Experimente mit der Hochdruckinjektion und dem externen Vernebler wurde eine wäßrige Lösung von Zirkonylnitrat erstellt, bei der bei

Erwärmung der Wasseranteil vollständig verdampft und (festes)  $\text{ZrO}_2$ -Pulver übrig bleibt ([Land93],[Rama99]). Dieses Verhalten dient als Grundlage für die Modellierung eines Lösungströpfchens, welches nun mit einem festen  $\text{ZrO}_2$ -Kern und einem Wassermantel modelliert wird. Auf Grund der wäßrigen Lösung wird für die Wärmeleitfähigkeit des Argonplasmas mit einer Wasserkonzentration von 1% im Plasma gerechnet. Die Anfangsgröße des festen  $\text{ZrO}_2$  bzw. des umgebenden Wassers wird durch die Konzentration eingestellt. In Abbildung 4.10 ist die Verdampfung von Zirkonium in Lösung dargestellt. Dabei wurde nur die Größenabnahme des nach vollständiger Verdampfung des Wassers übrig bleibenden  $\text{ZrO}_2$ -Kerns gegenüber der eingebrachten Tröpfchengröße in Abhängigkeit der eingestellten Konzentration aufgetragen. Der Wassermantel ist bis zu Tropfengrößen von  $23\ \mu\text{m}$  vollständig verdampft, so daß nur für kleinere Tropfen eine Verdampfung des Zirkoniums überhaupt erst möglich ist! Dieses Ergebnis ist besonders in Hinblick auf die in Abschnitt 6.3 gewonnenen Ergebnisse entscheidend, wo für verschiedene Methoden der Flüssigkeitsförderung Tröpfchengrößen bestimmt werden. Bei größeren Sprayteilchen kann das in Lösung befindliche Zirkonium nicht verdampfen. Mit zunehmender Konzentration wird der verdampfte Anteil des Kerns immer geringer.



**Abbildung 4.10:** Modellrechnung zur Verdampfung von Zirkonylnitrattröpfchen: Verdampfung von  $\text{ZrO}_2$  Pulver in Abhängigkeit von Tröpfchengröße und Konzentration.

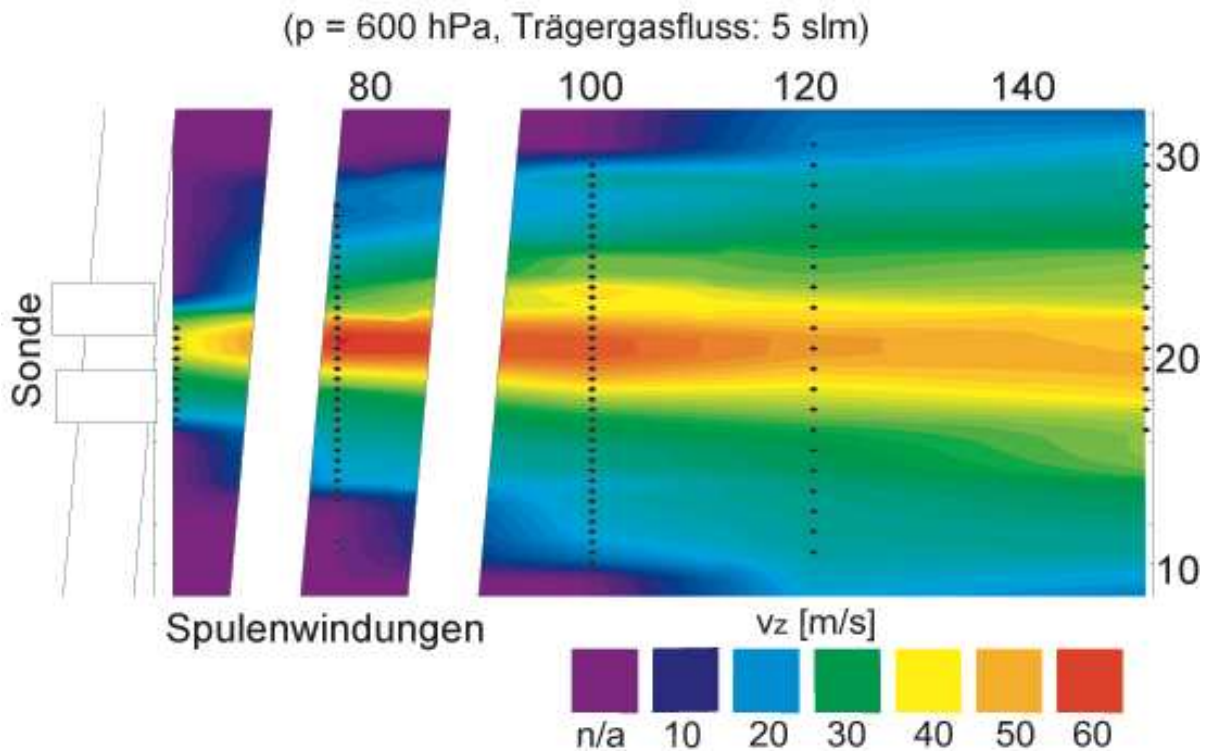
# Kapitel 5

## Messung von Plasmakenngrößen

Im folgenden wird die in Kapitel 3 vorgestellte Diagnostik verwendet, um die Strömungseigenschaften des ICP-Plasmas zu untersuchen. Die Geschwindigkeitsmessungen der Partikel, die ein Maß für das Plasmaverhalten sind, wird hier mit der Laser-Doppler-Anemometrie durchgeführt, die Messung der Partikelgrößen im Plasma mit Hilfe der Leuchtspurmethode.

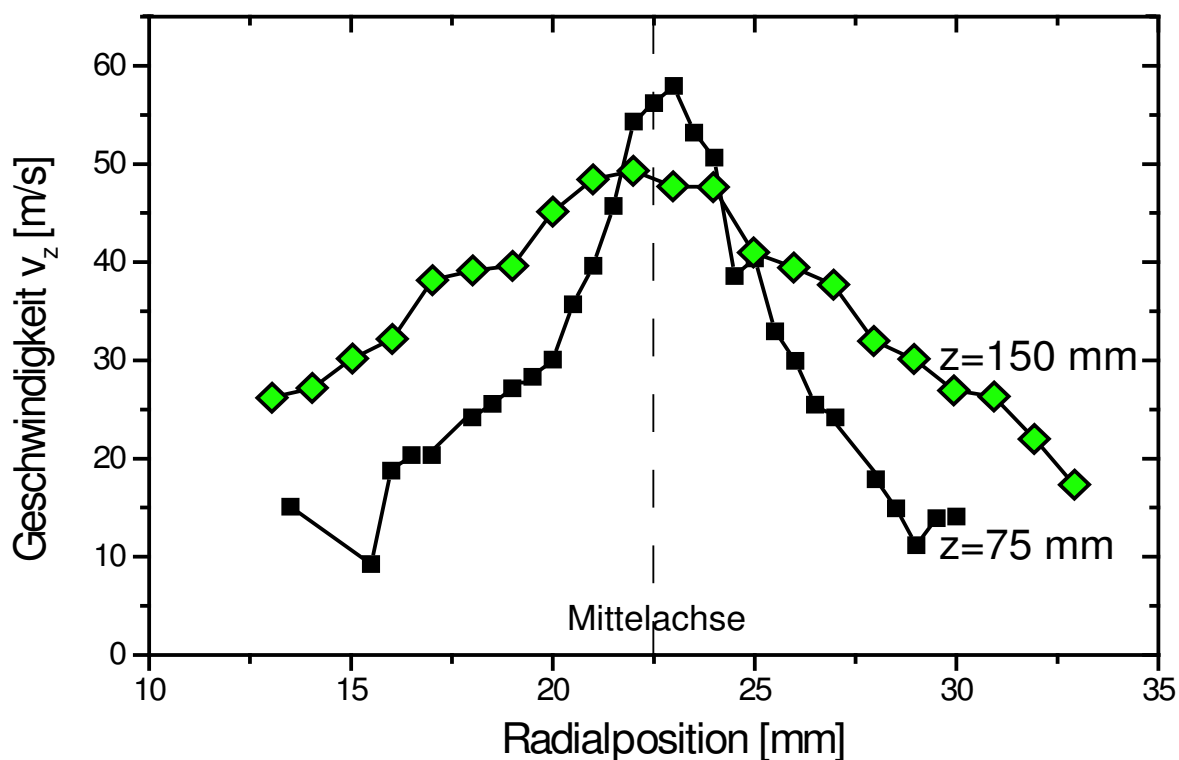
### 5.1 Geschwindigkeitsverteilung im Plasma

Bei den folgenden vorgestellten Messungen von Partikelgeschwindigkeiten kam der Scheibenträger zum Einsatz. Eine typische Verteilung der axialen Geschwindigkeitskomponente ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Die Meßorte sind in der Abbildung durch schwarze Punkte gekennzeichnet. Die dazwischen liegenden Werte wurden interpoliert. In den violetten Bereichen konnten keine Messungen vorgenommen werden, da hier auf Grund der axialen Partikeleinbringung offensichtlich keine Partikel vorhanden waren. Der Partikelstrom hat am Düsenausgang eine Breite von ca. 4 mm und weitet sich bis auf ca. 20 mm auf. Im Plasma wurden bei Partikeleinbringung mit dem Scheibenträger Partikelgeschwindigkeiten von 10 - 60 m/s gemessen.

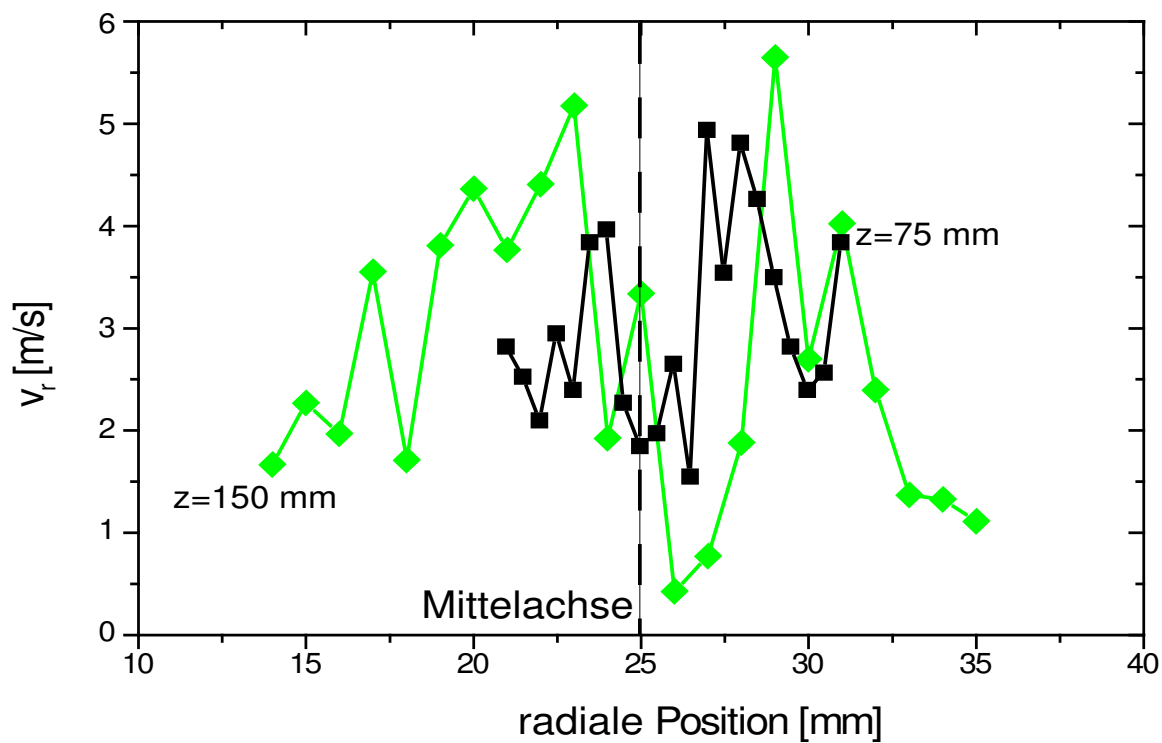


**Abbildung 5.1:** Verteilung der Partikelgeschwindigkeiten in axialer Richtung (Trägergasfluß: 6 slm, Druck: 600 hPa, Zentralgas: 10 slm, Mantelgas: 60 slm).

In Abbildung 5.2 sind exemplarisch zwei Radialprofile im Spulenbereich (bei  $z = 75 \text{ mm}$ ) und am Plasmaausgang (bei  $z = 150 \text{ mm}$ ) der axialen Geschwindigkeitskomponente dargestellt. Im Vergleich der beiden Kurven ist eine Verbreiterung und Abflachung des Geschwindigkeitsprofils zum Plasmaende hin erkennbar. Die Partikelgeschwindigkeit steigt nach dem Austritt aus der Düse bis auf  $60 \text{ m/s}$  an und fällt zum Ende hin um  $10 - 15\%$  ab. Das LDA-System erlaubt durch Drehen der Ausrichtung des Meßvolumens auch eine Vermessung der radialen Geschwindigkeitskomponente. Diese ist jedoch im Vergleich zur axialen Geschwindigkeit deutlich kleiner. Die Teilchen haben einen etwa  $10-20$  mal größeren axialen als radialen Geschwindigkeitsanteil. Bewegt sich ein Partikel durch das Meßvolumen so verweilt es auf Grund der hohen axialen Komponente nur kurz darin und der radiale Anteil liefert dementsprechend wenige Maxima. Typischerweise liegt die Zahl der Maxima zwischen  $1$  und  $10$  bei der Bestimmung der Radialkomponente. Daher liefert die FFT-Analyse und anschließende Mittelung Ergebnisse, die mit größeren Fehlern behaftet sind. In Abbildung 5.3 im Spulenbereich und am Plasmaausgang sind zwei Radialprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente dargestellt.



**Abbildung 5.2:** Radiale Verteilung der axialen Geschwindigkeit bei  $z = 75$  mm und  $z = 150$  mm (Bedingungen wie in Abbildung 5.1).



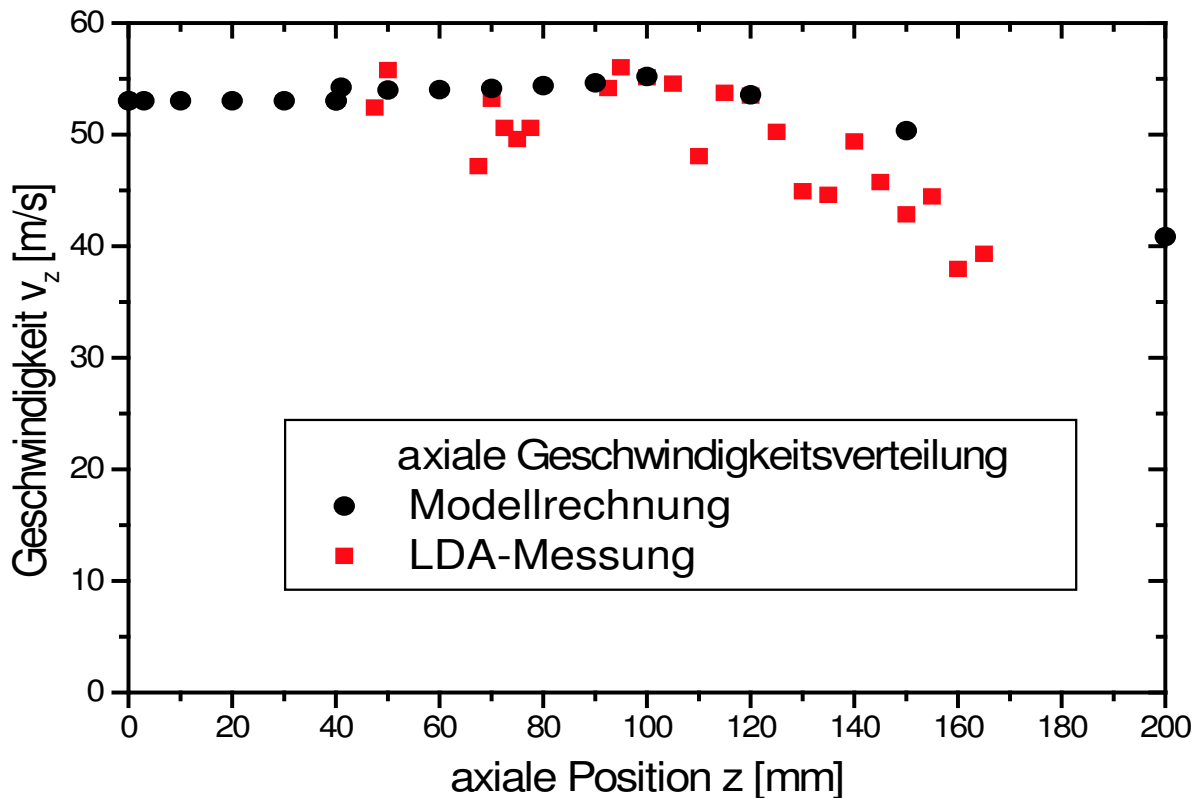
**Abbildung 5.3:** Radiale Verteilung der Radialgeschwindigkeit bei  $z = 75$  mm und bei  $z = 150$  mm (Bedingungen wie in Abbildung 5.1).

In den vermessenen Profilen der Radialgeschwindigkeit kann in der Mitte der Strömung eine minimale radiale Komponente der Geschwindigkeit festgestellt werden. Ein idealer Freistrahler hätte auf der Achse eine Radialkomponente von 0 m/s. Dies ist hier nicht der Fall und deutet auf eine Verwirbelung der Partikel hin, so daß auch auf der Achse der Radialanteil nicht völlig verschwindet. Die radiale Geschwindigkeit wächst dann (schnell) mit zunehmender Entfernung von der Mitte des Strahls zu einem Maximalwert an und fällt dann weiter nach außen (langsam) ab. Dieses Verhalten ist unter Berücksichtigung von Turbulenz typisch für einen frei ausströmenden Strahl in Luft und wird theoretisch in [Schl82] untersucht und durch LDA-Messungen (z.B. [Weis98]) bestätigt. Die Messungen im Plasma zeigen ein ähnliches Verhalten die radial nach außen wirkenden Kräfte sind von der Mitte aus am stärksten und werden nach außen hin schwächer. Die Breite des Zentralkanals (in dem die radiale Geschwindigkeitskomponente auf ihren Maximalwert steigt) nimmt mit zunehmender Entfernung vom Ausströmende ebenfalls zu. Dieses Verhalten stimmt ebenfalls mit dem eines Freistrahls überein, da sich das Maximum des dominierenden axialen Geschwindigkeitsanteils ebenfalls verbreitert, so daß die nach außen gerichteten Anteile erst weiter von der Achse entfernt ansteigen. Die maximalen Radialgeschwindigkeiten liegen dabei in einem Bereich zwischen 5 und 6 m/s. Das ist eine Größenordnung weniger als die maximalen Axialgeschwindigkeiten (50 - 60 m/s). Die Winkelgeschwindigkeiten sind nicht untersucht worden, die Messungen wurden nur in der Symmetrieebene durchgeführt.

Im folgenden werden die gewonnenen Ergebnisse mit den Ergebnissen der Plasma- und Partikelmodellierung verglichen. In Abbildung 5.4 ist ein Vergleich der axialen Geschwindigkeiten entlang der Plasmaachse aufgetragen. Die maximale Geschwindigkeit beträgt in beiden Fällen fast 60 m/s. Die Geschwindigkeit der Partikel steigt jeweils bis zu einer axialen Position von  $z = 100$  mm leicht auf den Maximalwert an und fällt dann ab. Da das Modell in diesem Bereich sehr grob wird, ist es schwierig, den Verlauf weiter zu vergleichen. Die gemessenen Geschwindigkeiten fallen im hinteren Bereich des Plasmabrenners stärker ab, als dies im Modell berechnet wurde. An der letzten mit der LDA noch meßbaren Position vor der Quenchröhre hatten die Teilchen noch eine Geschwindigkeit von 38 m/s, die nach den Modellrechnungen erst weiter hinten erreicht wird. Da aufgrund der Partikelträgheit genau ein entgegengesetztes Ergebnis zu erwarten wäre (also

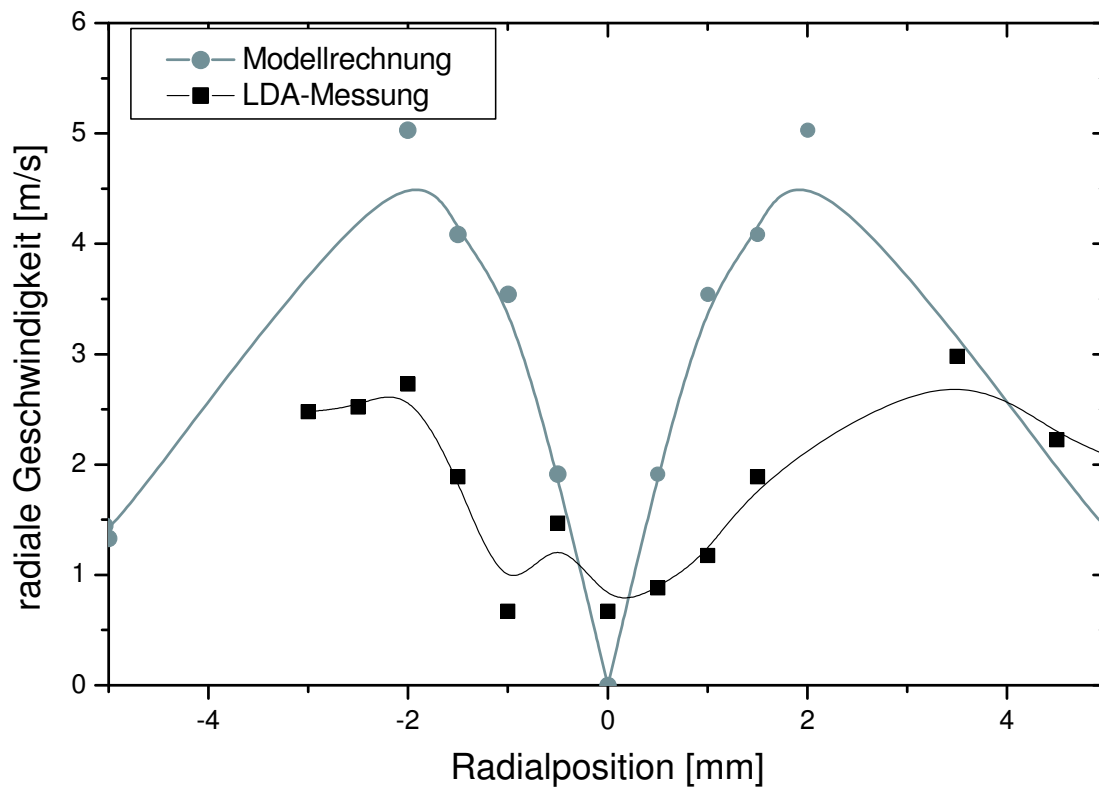


höhere gemessenen Partikelgeschwindigkeiten als Plasmageschwindigkeiten), kann der Unterschied nur dadurch begründet werden, daß die am Plasmaende simulierten Temperaturen (und damit Gasgeschwindigkeiten) höher als die tatsächlich im Experiment auftretenden Temperaturen sind.



**Abbildung 5.4:** Vergleich der Ergebnisse der axialen Geschwindigkeitskomponenten von Modellrechnungen und LDA-Messung entlang der Plasmaachse.

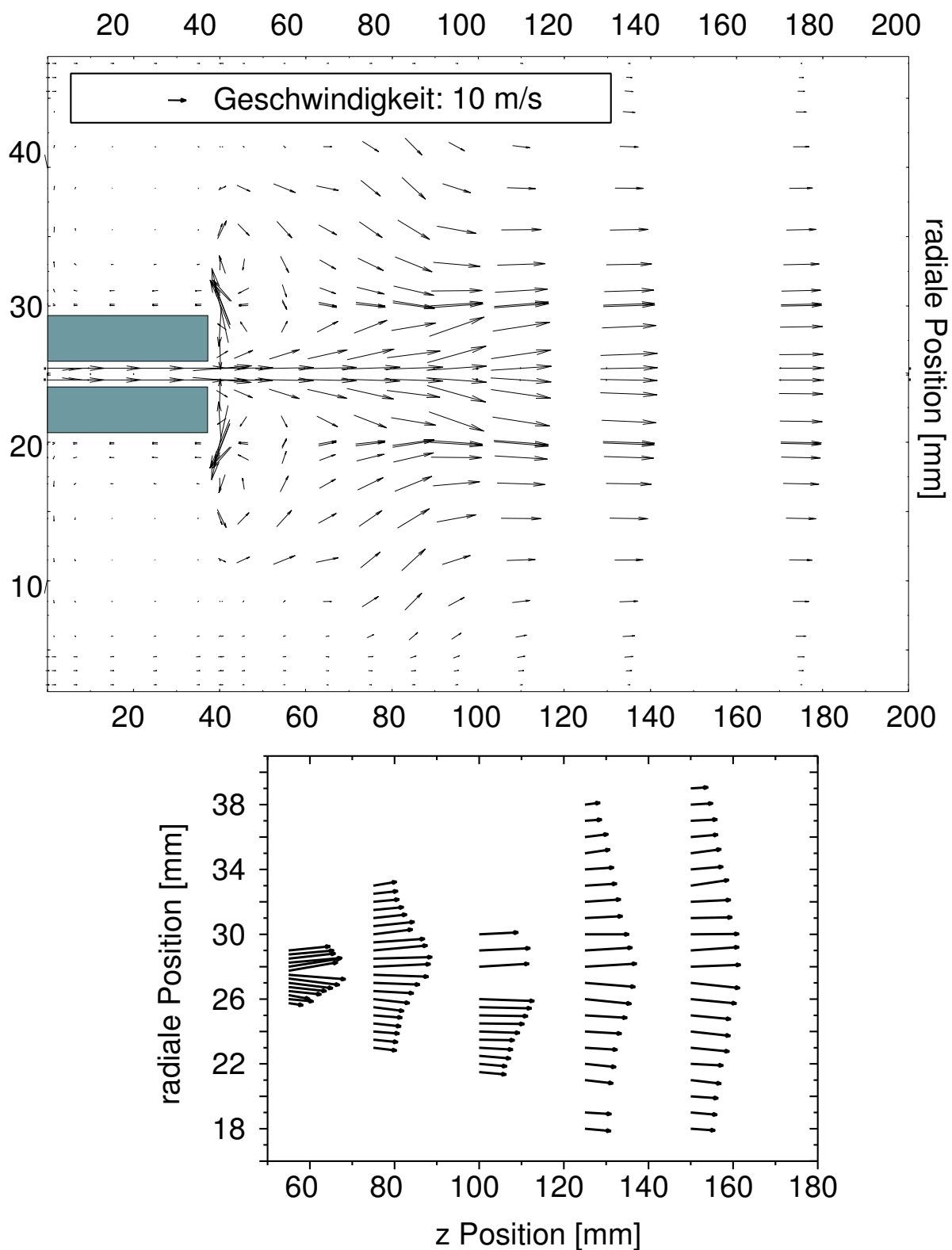
Der in Abbildung 5.5 dargestellte Zusammenhang vergleicht die gemessene radiale Verteilung der Radialgeschwindigkeit mit der modellierten beispielhaft für die Position  $z = 100$  mm. Es ist in beiden Fällen deutlich das Minimum in der Mitte des Strahls auszumachen und das Maximum der Radialkomponente liegt jeweils etwa  $\pm 2$  mm von der Achse entfernt, was also einem Abstand von ca. 4 mm entspricht. Die maximale radiale Geschwindigkeit liegt im Modell etwas höher, ist aber mit 5 m/s im Bereich der gemessenen Radialgeschwindigkeit an anderen Positionen (vergleiche Abbildung 5.3). Die modellierten radialen Geschwindigkeiten gehen bis auf Null zurück, da dies eine Randbedingung zur Berechnung der Geschwindigkeiten ist. In beiden Fällen (Modell bzw. Messung) fällt die Radialgeschwindigkeit nach ihrem Maximalwert jeweils nach außen hin ab.



**Abbildung 5.5:** Vergleich der ermittelten radialen Geschwindigkeitskomponente der Teilchen von Modellrechnungen und LDA-Messungen.

In Abbildung 5.6 sind die Ergebnisse der axialen und radialen Geschwindigkeitsmessungen in Form einer vektoriellen Darstellung zusammengetragen worden. Diese wird mit der modellierten Geschwindigkeitsverteilung verglichen. In beiden Fällen ist die aus der Mitte nach außen strömende Komponente erkennbar, welche die Verbreiterung des Strahls bewirkt.

Die weiter außen – besonders in Sondennähe – auftretenden Wirbel konnten nicht mehr gemessen werden, da hier keine (bzw. nur noch sehr selten) Partikel vorhanden waren. Da eine Vermessung des Wirbels am vorgestellten ICP-Experiment nicht möglich ist wurden Messungen am von Karman Institut für Strömungstechnik in Belgien durchgeführt. Diese Messungen werden im folgenden vorgestellt.

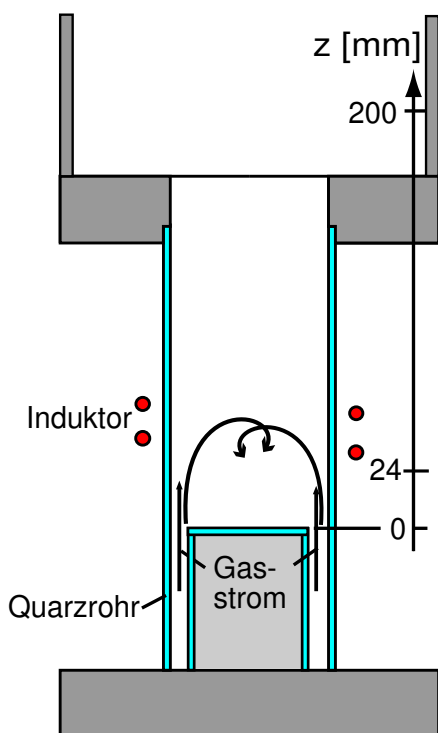


**Abbildung 5.6:** Vektorielle Darstellung der gemessenen (unten) und berechneten Geschwindigkeiten (oben) von eingebrachten Teilchen im HF-Plasma.

## 5.2 Vermessung des Rückwirbels

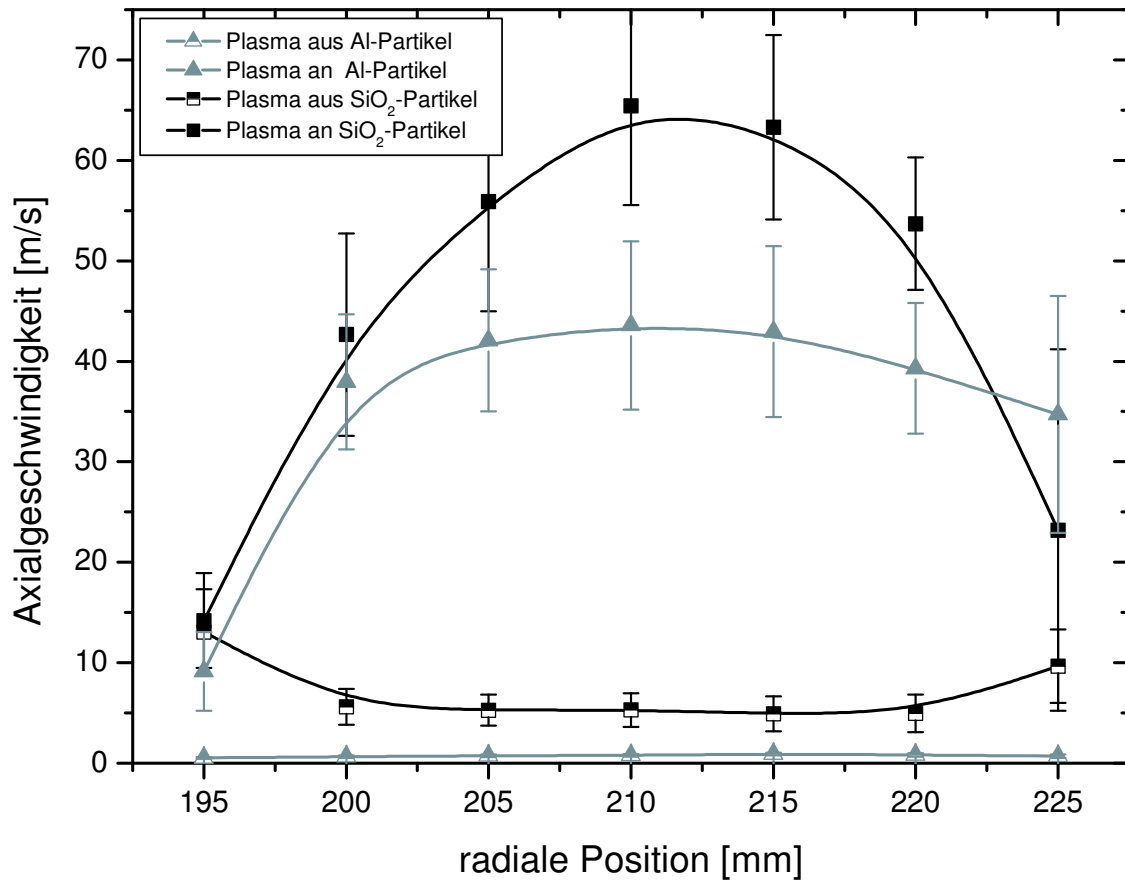
Am von Karman Institut für Strömungstechnik (VKI) in Brüssel wurden im Rahmen des wissenschaftlichen Austausches Messungen an einer ICP-Entladung durchgeführt, die der im Kapitel 2.1.1 vorgestellten ähnelt. An dieser Entladung war es möglich, Partikelgeschwindigkeiten über den gesamten Plasmabereich zu vermessen, da die Partikel zusammen mit dem Gasstrom eingebracht wurden. Dazu wurde das Gas vorher mit den Partikeln verwirbelt. Dabei wurden Aluminiumoxidpartikel (Partikelgröße ca.  $7\ \mu\text{m}$ ) und Siliziumoxidpartikel (ca.  $1\ \mu\text{m}$ ) im Plasma und in der Kaltgasströmung vermessen. Insbesondere konnte der in Modellrechnungen (Kapitel 4, Abbildungen 4.2 und 5.6) berechnete Wirbel bestätigt werden. Der Prozeßdruck lag bei 100 hPa, die maximale Leistung war 33 kW bei einer Frequenz von 12 MHz.

Ein schematischer Aufbau der VKI-Quelle ist in Abbildung 5.7 dargestellt. Das Strömungsverhalten ähnelt dem der beschriebenen Strömung in un-



**Abbildung 5.7:** Schematischer Aufbau der VKI-Fackel und typische Meßpositionen.

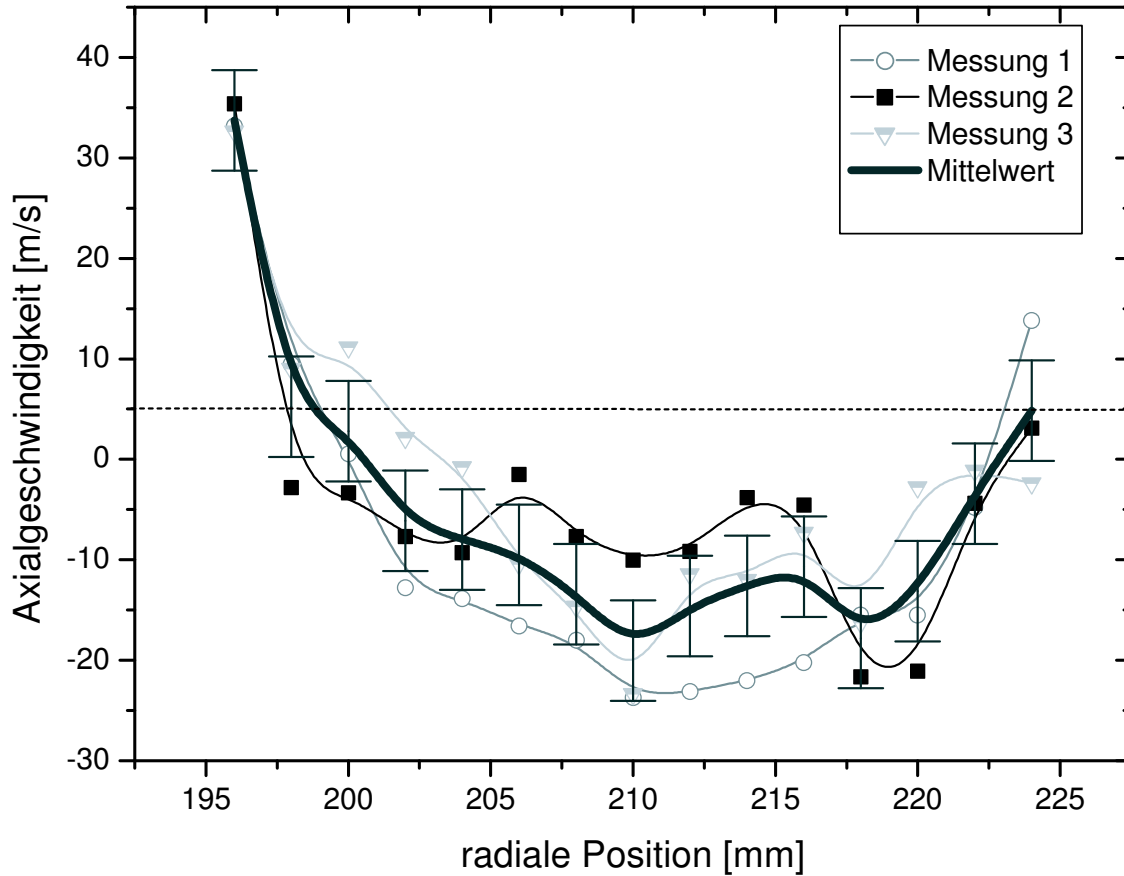
rem Versuch und unterscheidet sich lediglich durch das Fehlen eines zentralen Plasmagasstroms. Die Messungen wurden an verschiedenen axialen Positionen durchgeführt. Exemplarisch sind axiale Geschwindigkeitskomponenten in den Abbildungen 5.8 (bei 200 mm im Plasmaschweif) und 5.9 (bei 24 mm im Plasma direkt vor den Spulenwindungen) dargestellt. Die Balken in den Abbildungen geben die Breite der Verteilung der gemessenen Partikelgeschwindigkeiten an. Ein Ergebnis für die Axialgeschwindigkeit unter Verwendung verschiedener Ausgangsmaterialien im kalten Gasstrom und im Plasmabetrieb zeigt Abbildung 5.8. Im Vergleich zum Kaltgasstrom treten im Plasmabetrieb um eine Größenordnung höhere Geschwindigkeiten der Partikel auf. Die größeren Aluminiumoxid-Partikel folgen der Gasströmung schlechter als kleinere Partikel, was an dem schwächer ausgeprägten Hohlprofil im kalten Gasstrom und den geringeren Geschwindigkeiten im Plasma erkennbar ist.



**Abbildung 5.8:** Radiale Verteilung der axialen Geschwindigkeiten bei Zugabe verschiedener Ausgangspulver im Plasmabetrieb und im Kaltgas bei  $z=200$  mm.

In Abbildung 5.9 kann im Plasmabetrieb gut der im oberen Teil von Abbildung 5.6 dargestellte Wirbel vor den Spulen bestätigt werden, da im mittleren Bereich negative Geschwindigkeiten auftreten, was einer Rückströmung entspricht. Zur Bestimmung der Strömungsrichtung kamen hierbei die in Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Braggzellenmodule zum Einsatz. Am Rand strömt das Gas mit Geschwindigkeiten von 30-40 m/s ein und im Rückstrom bewegen sich die Teilchen mit bis zu 30 m/s entgegen der Strömungsrichtung des Plasmas. Die Plasmaachse lag bei allen Experimenten bei einer radialen Position von 210 mm. Mit wiederholten Messungen bei unterschiedlichen Detektoreinstellungen konnte dieses Ergebnis bestätigt werden. Die Geschwindigkeitsverteilung betrug bis zu 60 m/s wobei das Maximum der Häufigkeiten bei jeder Messung im selben Bereich lag. Nach Mittelung über viele Messungen ergibt sich ein absoluter Fehler von  $\pm 5$  m/s, der als Balken in der gemittelten (dicken) Kurve in

Abbildung 5.9 dargestellt ist.



**Abbildung 5.9:** Messung der radialen Verteilung der axialen Geschwindigkeitskomponente im Spulenbereich des ICP, bei  $z = 24$  mm (Messung mit  $\text{SiO}_2$ -Partikeln).

### 5.3 Messung von Partikelgrößen im Plasma

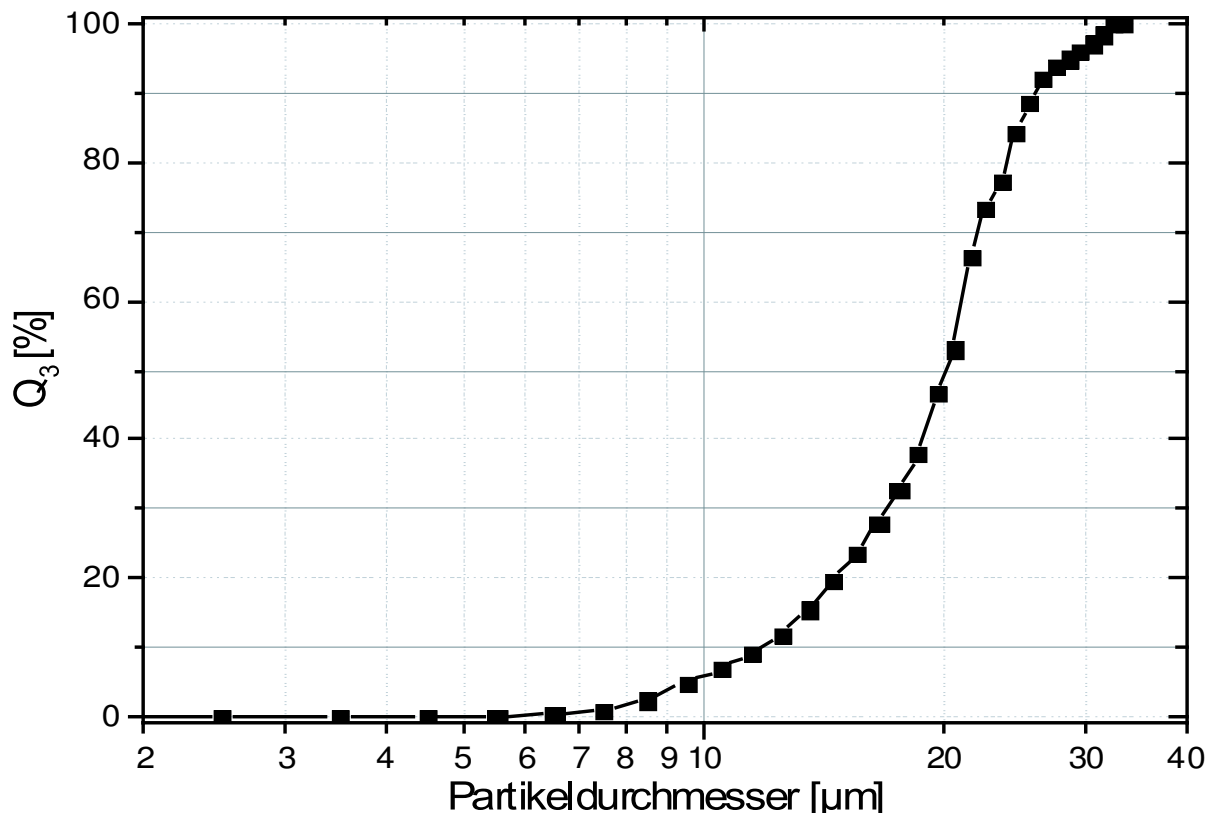
Zur Größencharakterisierung wird eine volumengewichtete, kumulative Anzahlverteilung  $Q_3(d)$  verwendet:

$$Q_3(d) = \frac{\int_0^d d^3 (dN/dd) dd}{\int_0^\infty d^3 (dN/dd) dd} \cdot 100\%. \quad (5.1)$$

Diese Verteilung gibt an, wieviel Prozent aller Teilchen kleiner als der Partikeldurchmesser  $d$  sind. Die Verwendung von  $Q_3(d)$  statt der Anzahl-

verteilung  $N(d)$  bietet sich an, da die Gesamtmenge von Interesse ist und daher die Verteilung volumengewichtet wird (und damit die Masse) und die Normierung erleichtert die Vergleichbarkeit der Ergebnisse. Die  $Q_3(d)$ -Verteilung wurde insbesondere gewählt, um die Verteilungen mit den Ergebnissen von kommerziellen Größenanalysegeräten, wie denen der Firma Sympatec in Abschnitt 6.3 vergleichen zu können, die diese Verteilung als Standardergebnis ausgeben. Eine Änderung der Partikelgrößenverteilung bewirkt eine Verschiebung der Verteilungskurve und liefert somit eine schnelle und einfache Vergleichsmöglichkeit von Meßergebnissen. Aus der so gewonnenen Verteilung läßt sich auch leicht der in der Spraytechnik häufig (wie auch in Abbildung 2.11) verwendete mittlere charakteristische Sauterdurchmesser  $d_{\text{SMD}}$  berechnen:

$$d_{\text{SMD}} = \frac{\sum_i N_i d_i^3}{\sum_i N_i d_i^2}. \quad (5.2)$$



**Abbildung 5.10:** Bestimmung der Partikelgrößen bei Einsatz des Scheibenförderers bei  $z = 60$  mm (Trärgasfluß: 5 slm, Druck: 600 hPa, Zentralgas: 10 slm, Mantelgas: 60 slm,  $\text{ZrO}_2$ : 5-40  $\mu\text{m}$ ).

In Abbildung 5.10 ist das Ergebnis einer Partikelgrößenmessung im Plasma bei Einsatz des Scheibenförderers dargestellt, die Messung wurde an mit Yttriumoxid stabilisiertem Zirkondioxidpulver<sup>1</sup> mit einer mittleren Korngröße von 20  $\mu\text{m}$  durchgeführt.

Die detektierten Partikel haben alle einen kleineren Durchmesser als 35  $\mu\text{m}$ , und der mittlere Sauterdurchmesser beträgt  $d_{\text{SMD}} = 18 \mu\text{m}$ . Da die Messung direkt 9 mm hinter dem Sondenausgang durchgeführt wurde kann keine Abnahme der Eingangspartikelgrößenverteilung beobachtet werden, wie sie von BUCHNER [Buch98] nach dem Durchgang durch das Förder-system festgestellt wurde. Die Leuchtspurmethode liefert demnach auch im Plasma sinnvolle Partikelgrößenverteilungen, aber wie bereits erwähnt ist es besonders in der heißen Plasmazone schwierig, wegen der geringen Laserintensitäten noch genügend Streulicht für eine Auswertung zu erzeugen. Dies liegt daran, daß für die Leuchtspurmessungen nur eine Detektion des Streulichts unter einem Winkel von  $90^\circ$  möglich war, was nach Abbildung 3.3 geringere Streulichtintensitäten als im Fall der Rückstreuung (wie bei der LDA) liefert. Zum Plasmaende hin konnten keine brauchbaren kontrastreichen Bilder mehr aufgenommen werden, so daß hier keine Meßergebnisse mehr vorliegen.

---

<sup>1</sup>Firma TOSOH, Kaisei, Japan



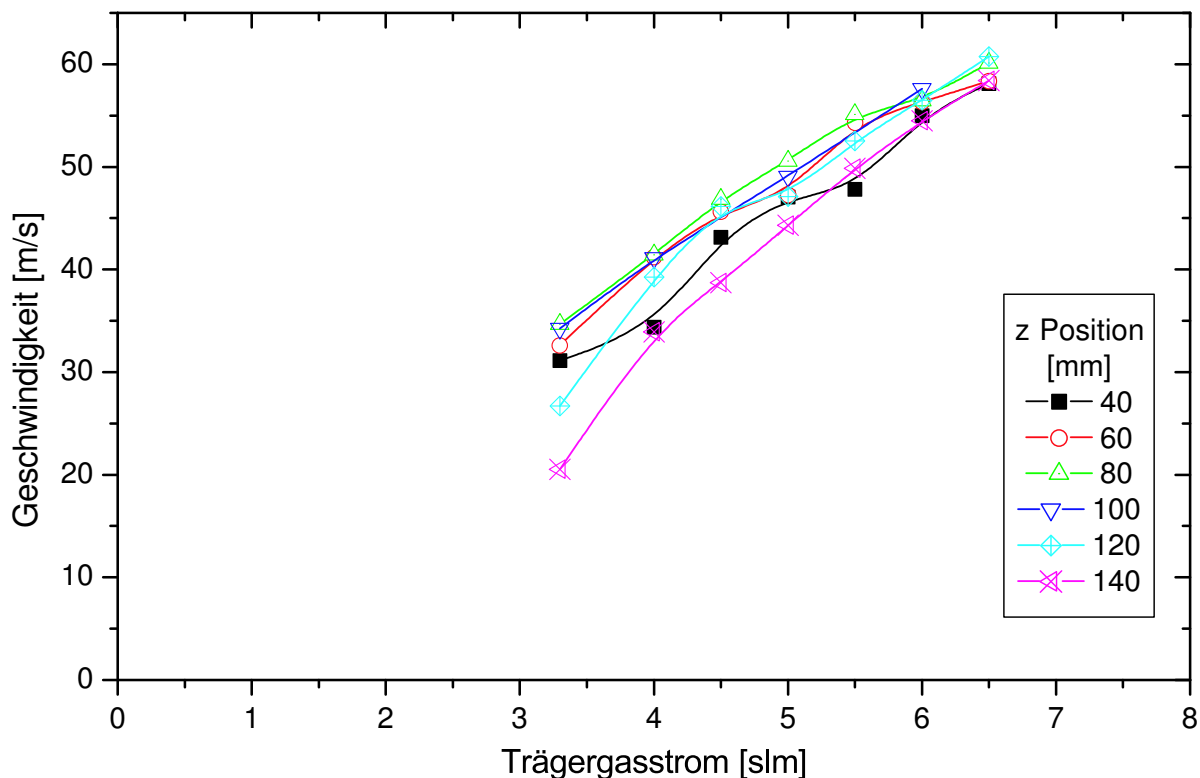
# Kapitel 6

## Variation der Plasmaparameter

Nach dem im Kapitel 5 ein Überblick von Geschwindigkeiten und Partikelverteilungen im HF-Plasma gegeben wurde, werden nun der Einfluß der Plasmaparameter Druck, Trägergasstrom, HF-Leistung, Mantelgasstrom und Zentralgasstrom eingehend untersucht. Weitergehend wird der Betrieb der Plasmafackel in Umkehrströmung vermessen und die verschiedenen Fördermethoden gegenübergestellt. Ziel der Parametervariation ist die vollständige Verdampfung der eingebrachten Zirkoniumdioxidpartikel. Es sind also Bedingungen zu finden, bei denen die Partikelgeschwindigkeiten möglichst gering sind, um die Verweildauer der Partikel im Plasma zu erhöhen bei gleichzeitig möglichst hohen Plasmatemperaturen, die zeitgleich mit Hilfe der Spektroskopie (siehe [Schu03]) bestimmt werden. Hilfreich ist ebenfalls eine feine Partikelmischung der Ausgangsstoffe und eine gleichmäßige reproduzierbare Förderung. Die im folgenden in den Graphen dargestellten Balken an den Meßwerten bezeichnen nicht die Fehler des Meßwertes, sondern stellen die Breite der zeitlich gemittelten Verteilung der Geschwindigkeiten an dem jeweiligen Meßpunkt dar.

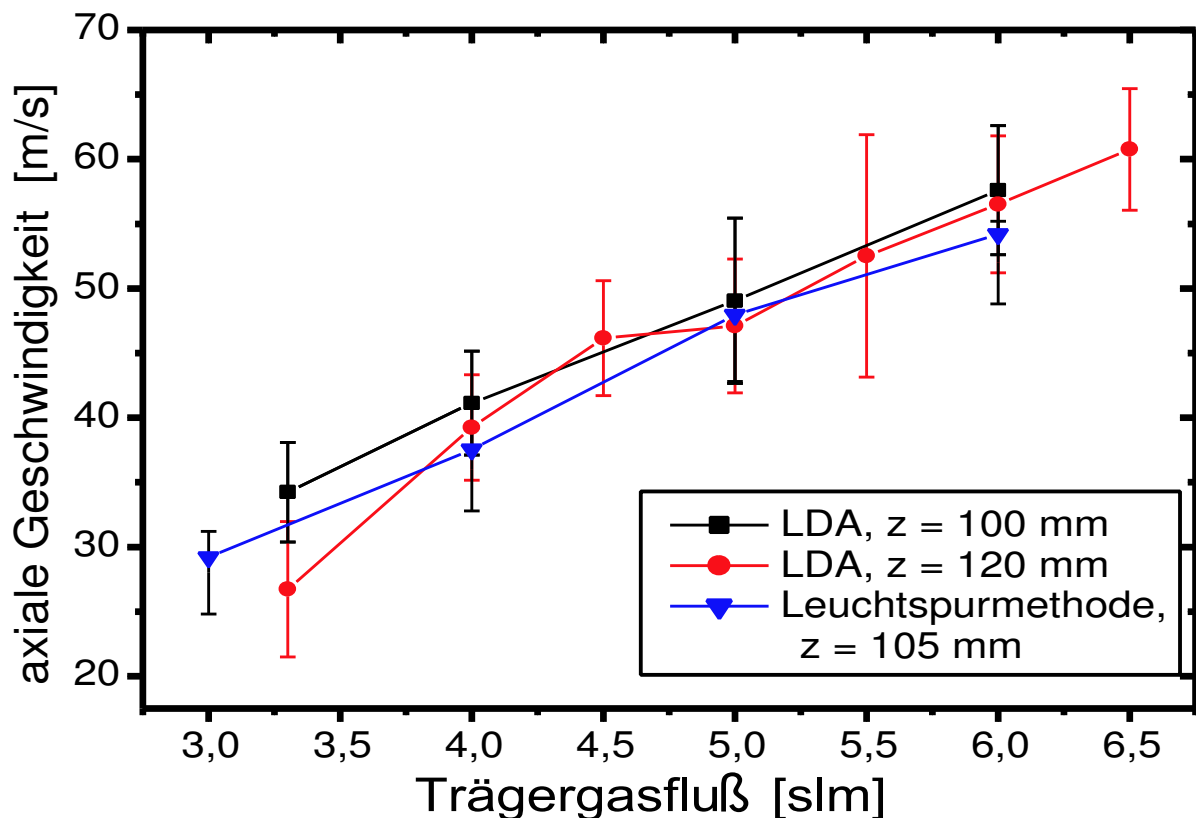
## 6.1 Einfluß der Gasströmung und des Drucks

### 6.1.1 Variation des Trägergasstroms



**Abbildung 6.1:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten an verschiedenen axialen Positionen  $z$  in der Mitte der Entladung ( $r=0$ ) bei Variation des Trägergasstroms (Scheibenträger, HF-Leistung: 10 kW, Druck: 500 hPa, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).

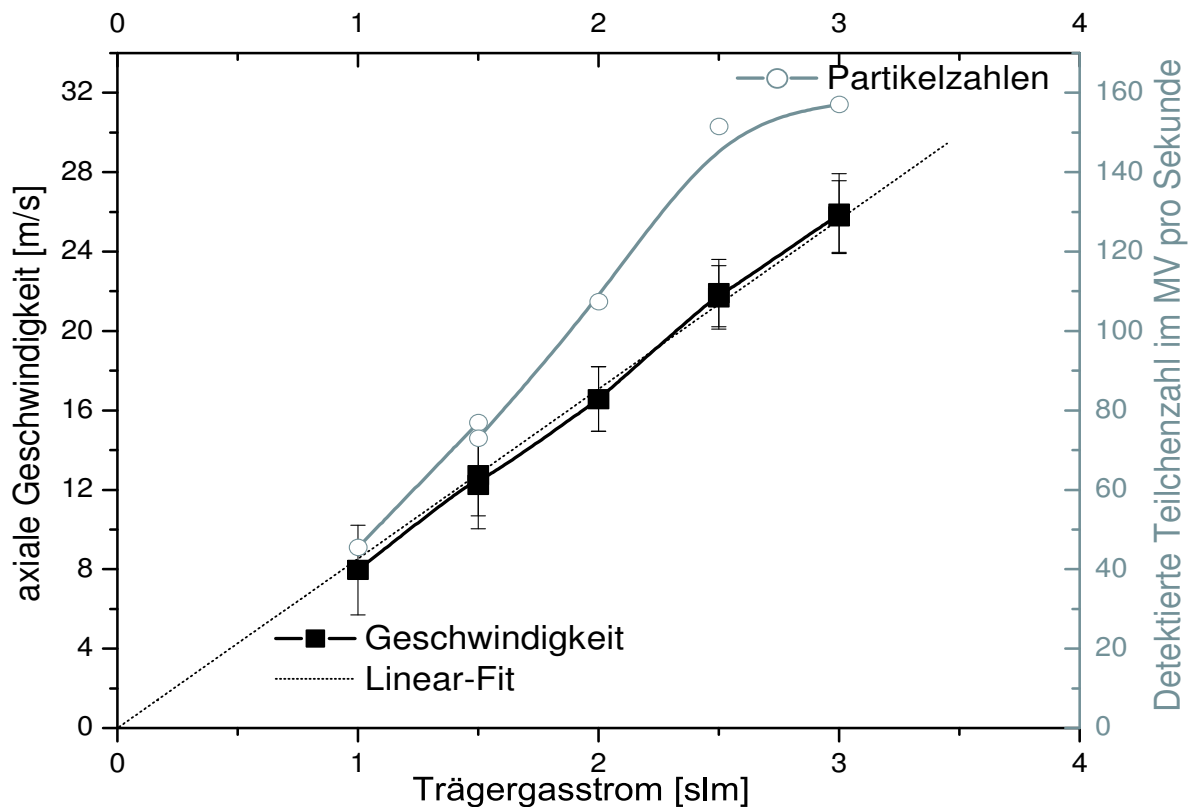
Zunächst wurde der Einfluß des Trägergasstroms untersucht. Abbildungen 6.1, 6.2 und 6.3 zeigen die Abhängigkeit der axialen Geschwindigkeit vom eingestellten Trägergasstrom. Im Hinblick auf die Partikelverdampfung ist eine Senkung der Trägergasflußrate mit einhergehender Geschwindigkeitsreduktion der Teilchen wichtig, da die längeren Verweilzeiten im Plasma zu verbesserter Verdampfung führen. In den Abbildungen 6.1 und 6.2 kam der Scheibenträger zum Einsatz, während in Abbildung 6.3 der Fließbettförderer verwendet wurde. In beiden Fällen kann nahezu ein linearen Anstieg der Partikelgeschwindigkeiten mit der Trägergasmenge beobachtet werden.



**Abbildung 6.2:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten mit Hilfe der Leuchtspurmethode bei Variation des Trägergasstroms und Vergleich mit LDA Messungen an verschiedenen z-Positionen (Scheibenförderer, HF-Leistung: 10 kW, Druck: 500 hPa, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).

Die Ergebnisse der LDA werden nun mit Hilfe der Leuchtspurmethode verifiziert. In Abbildung 6.2 ist die Abhängigkeit der Partikelgeschwindigkeit vom Trägergasstrom im Vergleich zu LDA Messungen dargestellt.

Die mit den beiden Verfahren gemessenen Geschwindigkeiten stimmen gut überein und in beiden Fällen steigt, wie zu erwarten, mit Erhöhung des Trägergasstroms die Partikelgeschwindigkeit. Beide Meßverfahren liefern sinnvolle Ergebnisse und sind somit zur Geschwindigkeitsbestimmung von Partikeln geeignet, wobei bei der Leuchtspurmethode die Detektionsgrenze von Teilchen mit etwa  $5\ \mu\text{m}$  Durchmesser höher liegt als bei der LDA, wo sie bei etwa  $1\ \mu\text{m}$  liegt. Bei Partikelgrößen unter  $5\ \mu\text{m}$  reicht bei der Leuchtspurmethode der Kontrast nicht mehr aus, um die Spuren eindeutig zuzuordnen zu können.

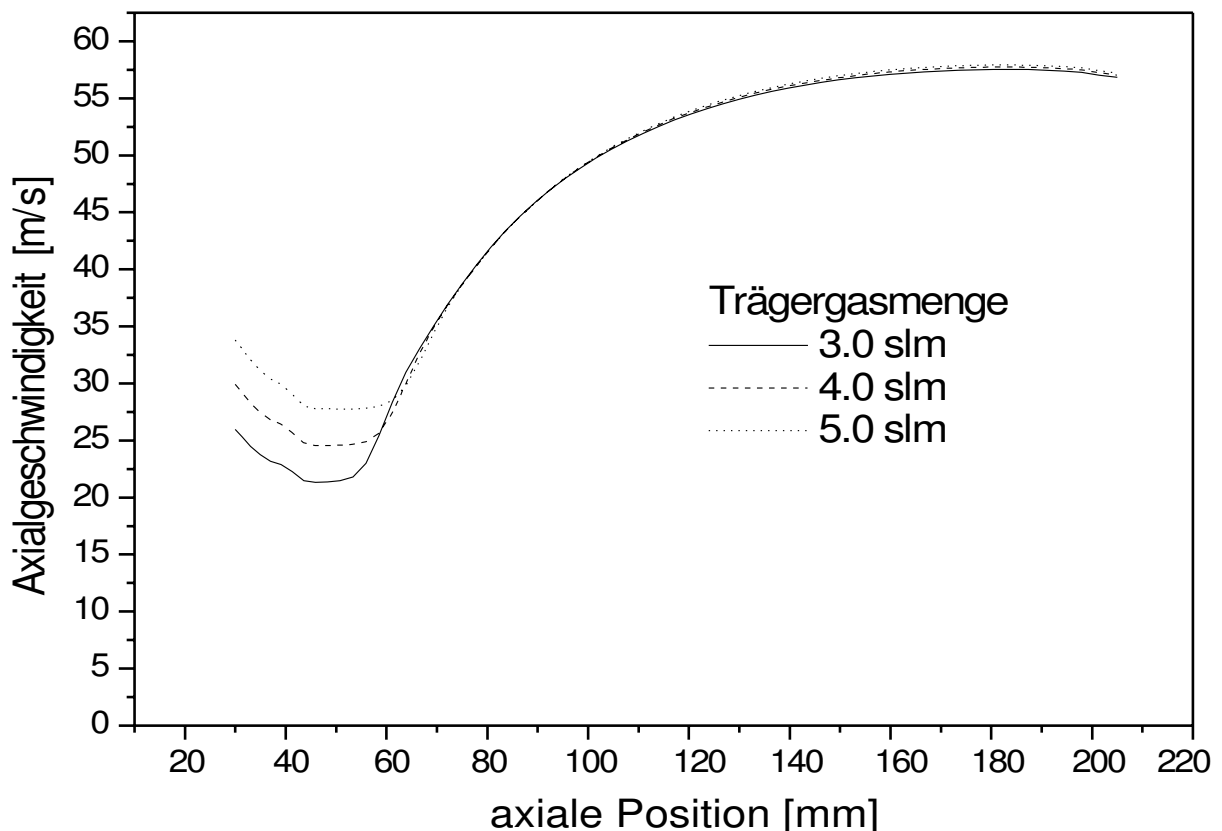


**Abbildung 6.3:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten und der Partikelzahlen bei Variation des Trägergasstroms (auf der Plasmaachse ( $r=0$ ) bei  $z = 90$  mm; Fließbettförderer, HF-Leistung: 10 kW, Druck: 500 hPa, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).

Beim Scheibenförderer sind zum Betrieb höhere Gasströme als beim Fließbettförderer nötig und im Vergleich können nur größere Partikel ( $10\text{--}60\ \mu\text{m}$ , auf Grund der im Förderer nötigen Fließeigenschaften) gefördert werden, was eine höhere Trägheit der Partikel nach sich zieht. Der Einfluß der Trägergasmenge auf die Partikelgeschwindigkeiten im Plasma ist beim Scheibenförderer, mit einem Anstieg der Partikelgeschwindigkeiten von  $10\ \text{m/s}$  pro slm und beim Fließbettförderer mit  $9\ \text{m/s}$  pro slm nahezu gleich. Zur Erhöhung der Verweilzeiten der Partikel im Plasma muß also der Trägergasstrom minimiert werden, was allerdings auch eine Reduktion der Menge des geförderten Materials nach sich zieht (siehe Häufigkeit der detektierten Partikel im Meßvolumen in Abbildung 6.3: bei einer Erhöhung der Trägergasmenge von 1 slm auf 3 slm erhöht sich die detektierte Teilchenanzahl im Meßvolumen ebenfalls um einen Faktor 3).

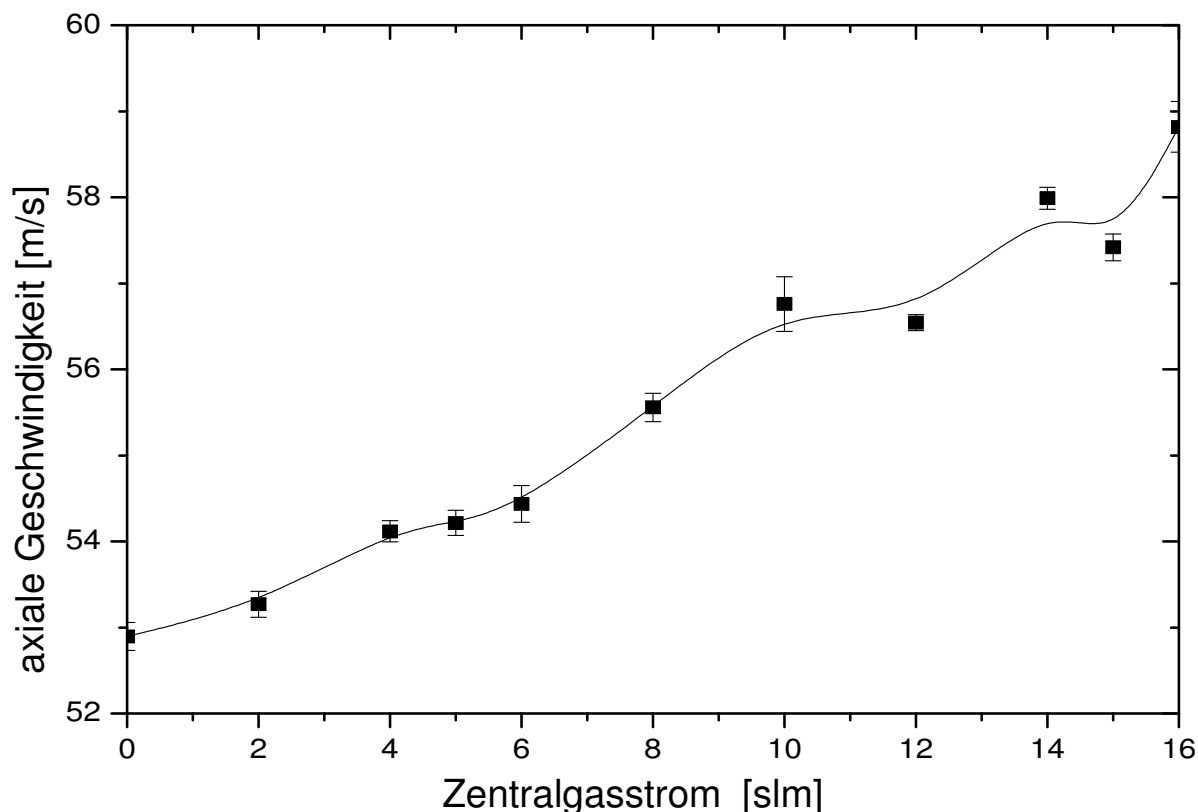
In Abbildung 6.4 ist die modellierte Abhängigkeit der Gasgeschwindigkeiten entlang der Plasmaachse dargestellt. Nach den Modellrechnungen zeigt sich eine Abhängigkeit der Geschwindigkeiten vom Trägergasstrom,

die allerdings nur bis zu 40 mm nach dem Austritt aus der Sonde zu beobachten ist. Nach dieser Strecke ist das kalte Gas aufgeheizt und mit dem Plasmagasstrom vermischt, so daß die Geschwindigkeiten denen der Plasmaströmung ohne Trägergas entsprechen. Die absoluten Werte der modellierten Gasgeschwindigkeiten sind höher als die gemessenen, da in den Rechnungen mit höherer Generatorleistung gerechnet wird (16 kW), als bei den Experimenten (10 kW) eingestellt. Zum anderen sinken die Gasgeschwindigkeiten erst später zum Ende der Entladung hin ab, als dies durch die Messung der Partikelgeschwindigkeiten mit Hilfe der LDA bestimmt wurde. Dies liegt wiederum an der höheren Leistung die im Modell angesetzt wird, die somit eine längere heiße Plasmazone nach sich zieht. Ein weiterer Unterschied ist eine spätere Angleichung der Partikelgeschwindigkeit mit den Geschwindigkeit des Plasmas, da die Partikel auf Grund ihrer Trägheit diese erst später (bei größeren axialen Positionen  $z$ ) erreichen.



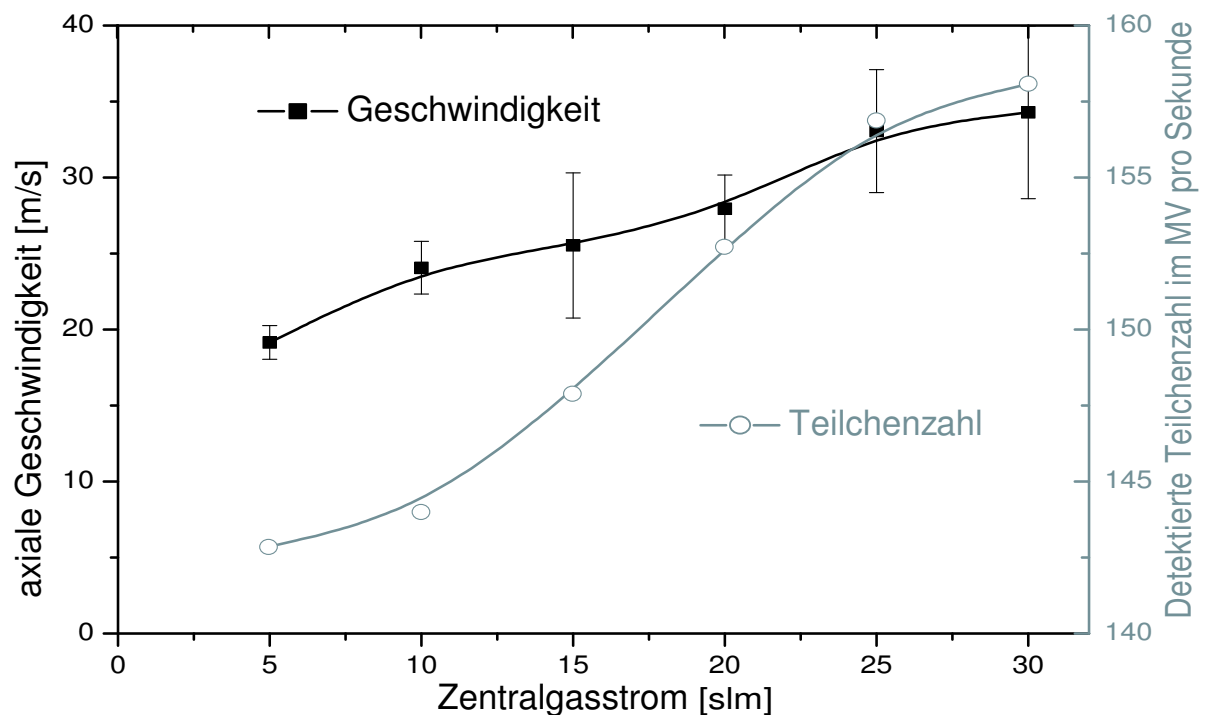
**Abbildung 6.4:** Simulation der axialen Gasgeschwindigkeiten entlang der Plasmaachse ( $r=0$ ) bei Variation des Trägergases (70 slm Mantelgas, 5 slm Zentralgas, 500 hPa Druck und 8 kW eingekoppelter HF-Leistung (ca. 16 kW Generatorleistung)) [Schu03].

### 6.1.2 Variation des Zentralgasstroms

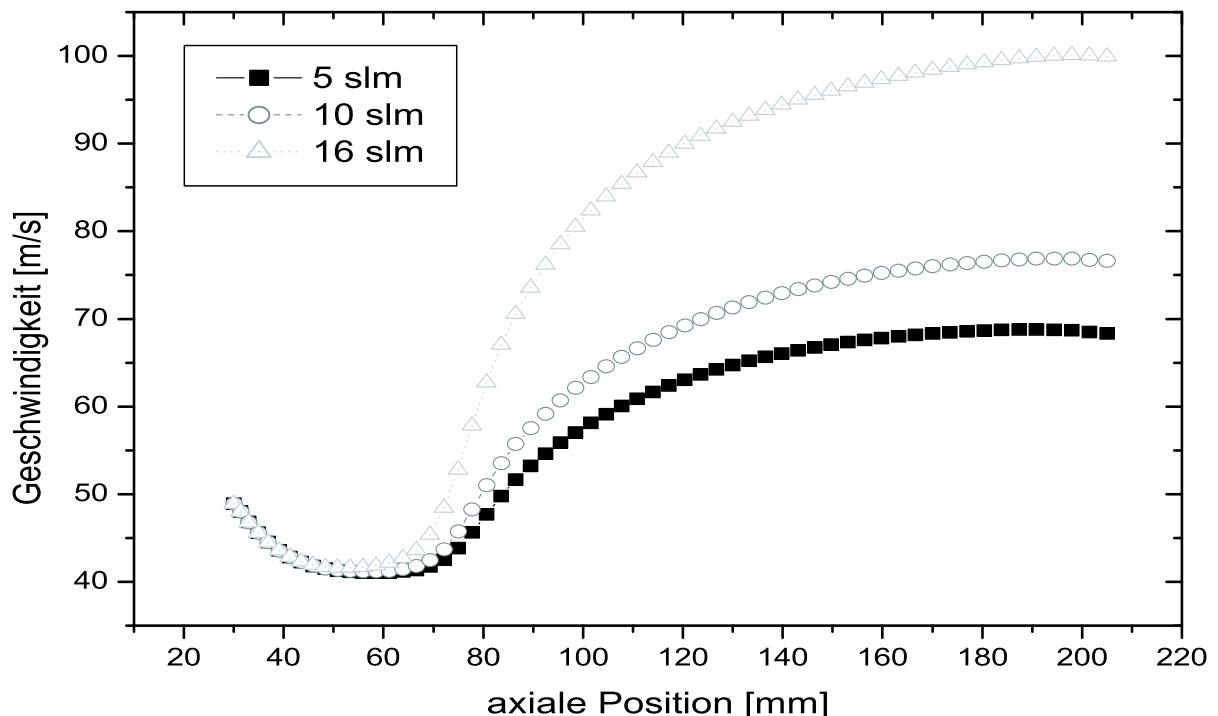


**Abbildung 6.5:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten bei Variation des Zentralgasstroms ( $z = 90$  mm,  $r = 0$  mm, Scheibenförderer, HF-Leistung: 10 kW, Druck: 500 hPa, Trägergas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).

Der Einfluß des Zentralgasstroms auf die Partikelgeschwindigkeiten erweist sich bei Einsatz des Scheibenförderers (Abb. 6.5) als gering. Die der Anstieg der Partikelgeschwindigkeiten in Abhängigkeit vom Zentralgasstrom beträgt etwa  $0,375 \frac{\text{m/s}}{\text{slm}}$ . Beim Fließbettförderer (Abb. 6.6) ist mit Anstieg des Zentralgasstroms ein Anstieg der Geschwindigkeiten der Partikel von etwa  $0,6 \frac{\text{m/s}}{\text{slm}}$  erkennbar. Der beim Fließbettförderer im Gegensatz zum Scheibenförderer um einen Faktor 1,6 stärkere Einfluß ist, wie in Abschnitt 6.3 beschrieben, auf die geringen Trägergasmengen und die kleinen Partikelgrößen des Fließbettförderers zurückzuführen, so daß die Teilchen dem Plasmagas besser folgen können. Hohe Gasgeschwindigkeiten bedeuten eine Verkürzung der Verweilzeiten der Partikel im Plasma, was die Verdampfung verschlechtert. In Abbildung 6.6 hat dieser Umstand einen Anstieg der Zahl der detektierten Partikel um etwa 10% zur Folge, was einer Abnahme der Zahl der verdampften Partikel im Plasma entspricht.



**Abbildung 6.6:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten und Fördermenge im Meßvolumen bei Variation des Zentralgasstroms ( $z = 150$  mm,  $r = 0$  mm, Fließbettförderer, HF-Leistung: 10 kW, Druck: 500 hPa, Trägergas: 1,5 slm, Mantelgas: 60 slm).

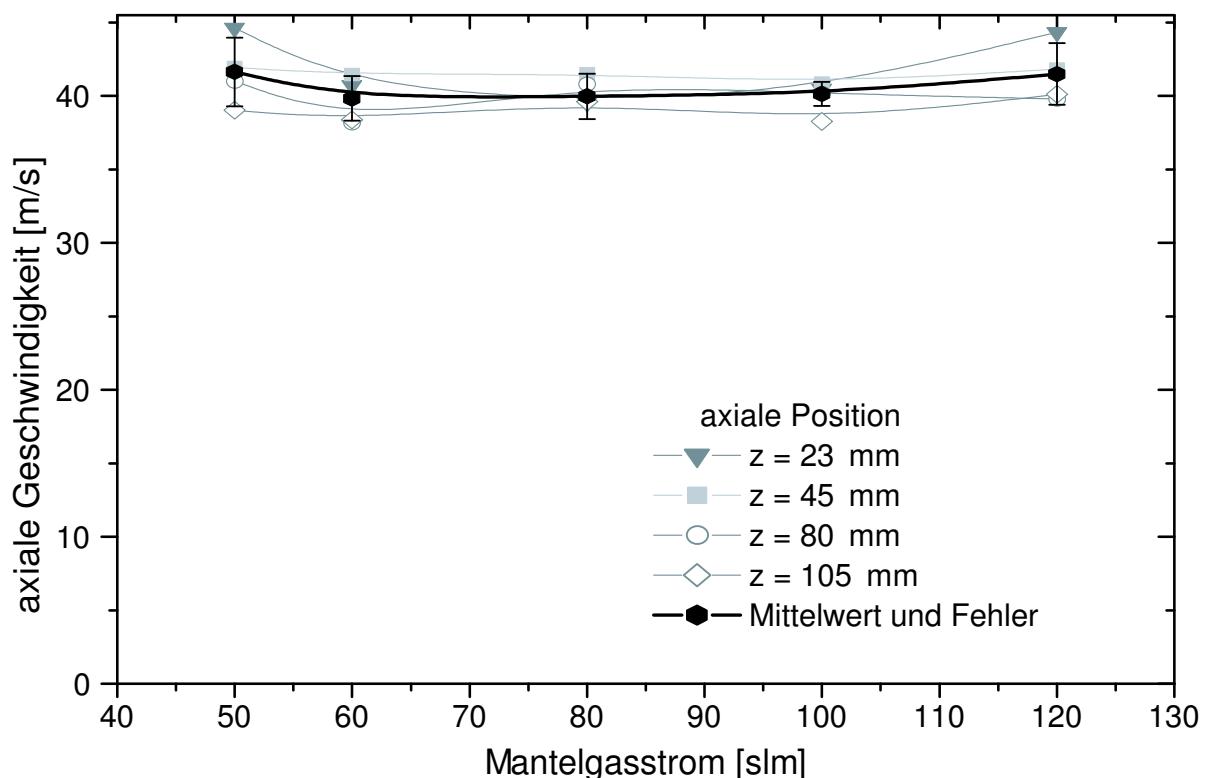


**Abbildung 6.7:** Modellierung der axialen Partikelgeschwindigkeiten und Fördermenge im Meßvolumen bei Variation des Zentralgasstroms (70 slm Mantelgas, 3 slm Trägergas, 500 hPa Druck und 8 kW eingekoppelte HF-Leistung [Schu03]).

Abbildung 6.7 zeigt den modellierten Geschwindigkeitsverlauf der Gasgeschwindigkeiten entlang der Plasmaachse. Wie auch durch die Messungen mit dem Fließbettförderer bestätigt wurde steigen bei Erhöhung des Zentralgasstroms die Gasgeschwindigkeiten an. Die Erhöhung des Zentralgasflusses bewirkt im Modell (und auch im Experiment) eine verstärkte Leistungsaufnahme, das heißt der anfangs eingestellte Wert von 8 kW der eingekoppelten Leistung erhöht sich auf etwa 12 kW. Daher erhöhen sich die Temperaturen und somit auch die Gasgeschwindigkeiten im Plasma, da mit höheren Temperaturen die Dichte sinkt und somit bei konstantem Volumenstrom die Geschwindigkeiten steigen.

### 6.1.3 Variation des Mantelgasstroms

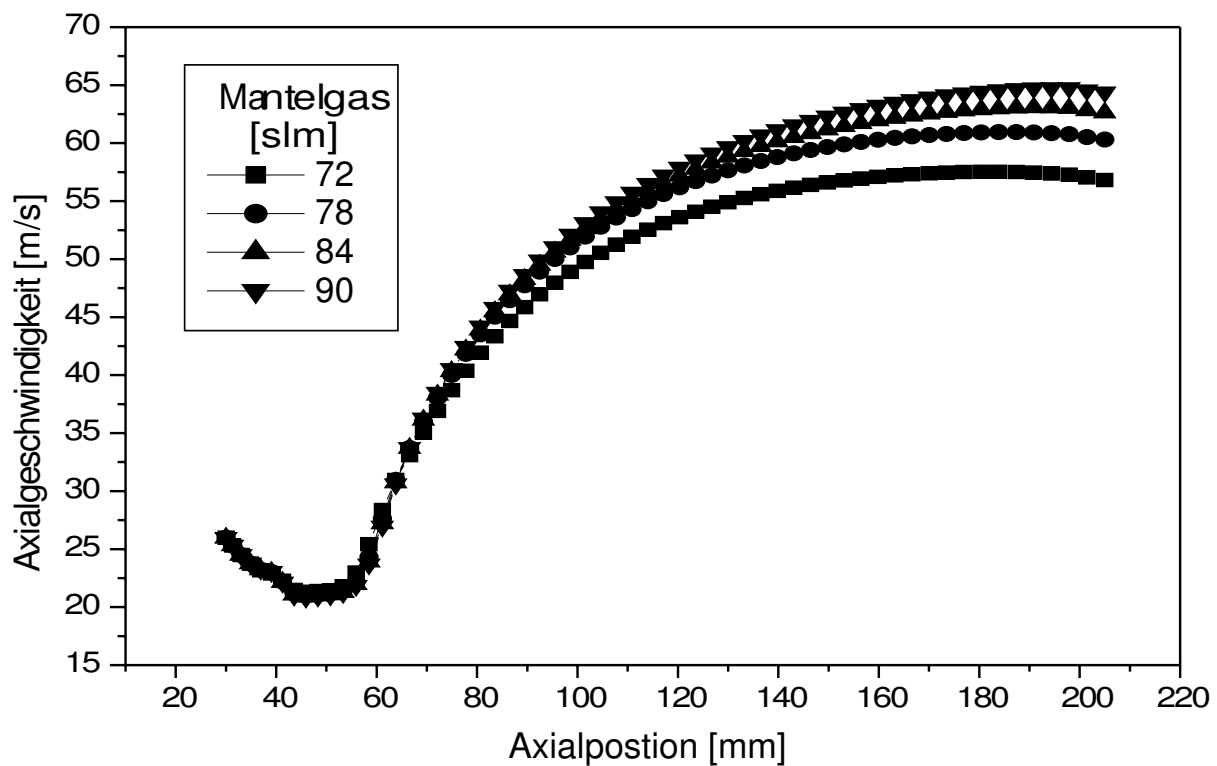
Die Variation des Mantelgasstroms hat vor allem Einfluß auf die Stabilität der Plasmaflamme. Die Messung der Partikelgeschwindigkeiten (dargestellt in Abbildung 6.8) zeigt, daß es praktisch keinen direkten Einfluß des Mantelgasstroms gibt.



**Abbildung 6.8:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten an verschiedenen axialen Positionen bei Variation des Mantelgasstroms (70 slm Mantelgas, 3 slm Trägergas, 500 hPa Druck und 8 kW eingekoppelte HF-Leistung).



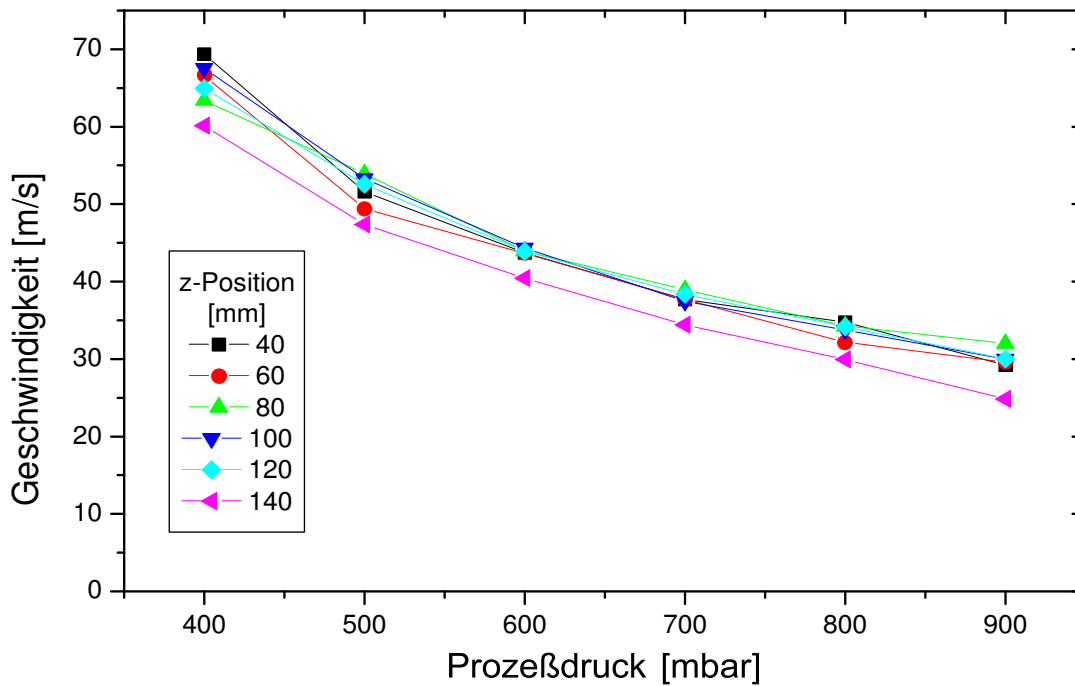
Die Modellrechnungen in Abbildung 6.9 zeigen jedoch am Plasmaende einen leichten Anstieg der Gasgeschwindigkeiten bei Erhöhung des Mantelgases, dieser Effekt konnte durch die Messungen der Partikelgeschwindigkeiten nicht beobachtet werden. Mögliche Gründe dafür, daß die in den Modellrechnungen berechnete Abhängigkeit der Geschwindigkeiten vom Mantelgasstrom nicht beobachtet werden konnte ist zum einen die zunehmende Instabilität der Plasmaflamme, was sich in Schwankungen von Plasmagröße und Form äußert und somit auch die Partikelgeschwindigkeiten beeinflusst. Zum anderen ist, wie bereits diskutiert wurde, die eingekoppelte Leistung im Modell höher als im Experiment, was die Ausdehnung und Geschwindigkeiten des Plasmas beeinflusst.



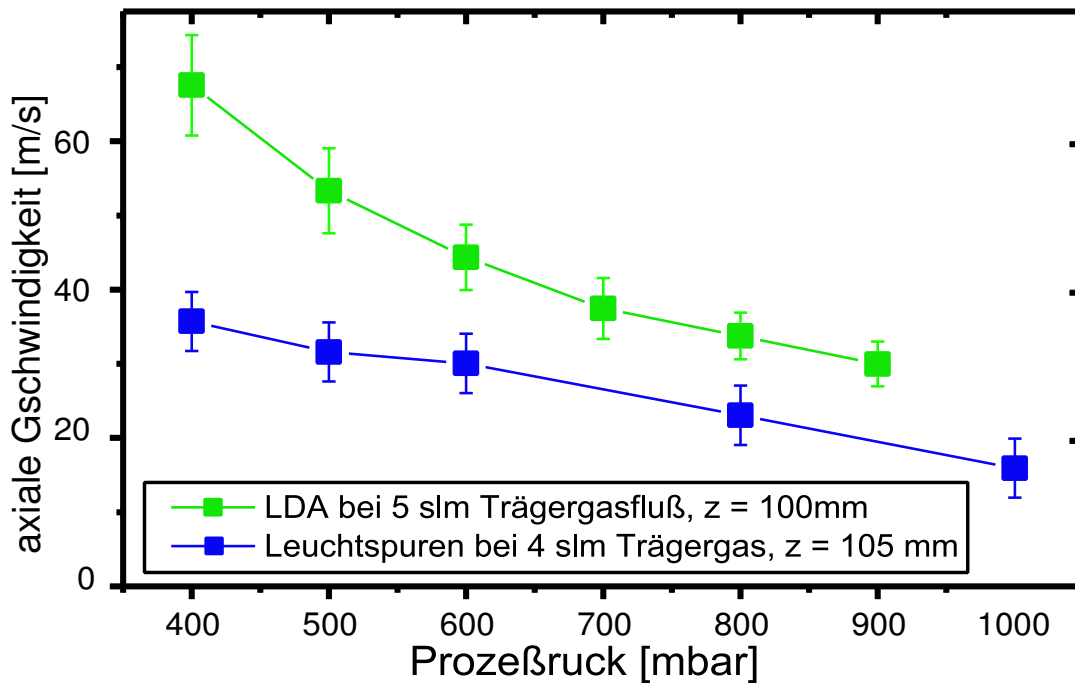
**Abbildung 6.9:** Modellierte axiale Geschwindigkeiten bei Variation des Mantelgasstroms (5 slm Zentralgas, 3 slm Trägergas, 500 hPa Druck und 8 kW eingekoppelte HF-Leistung) [Schu03].

#### 6.1.4 Variation des Prozeßdrucks

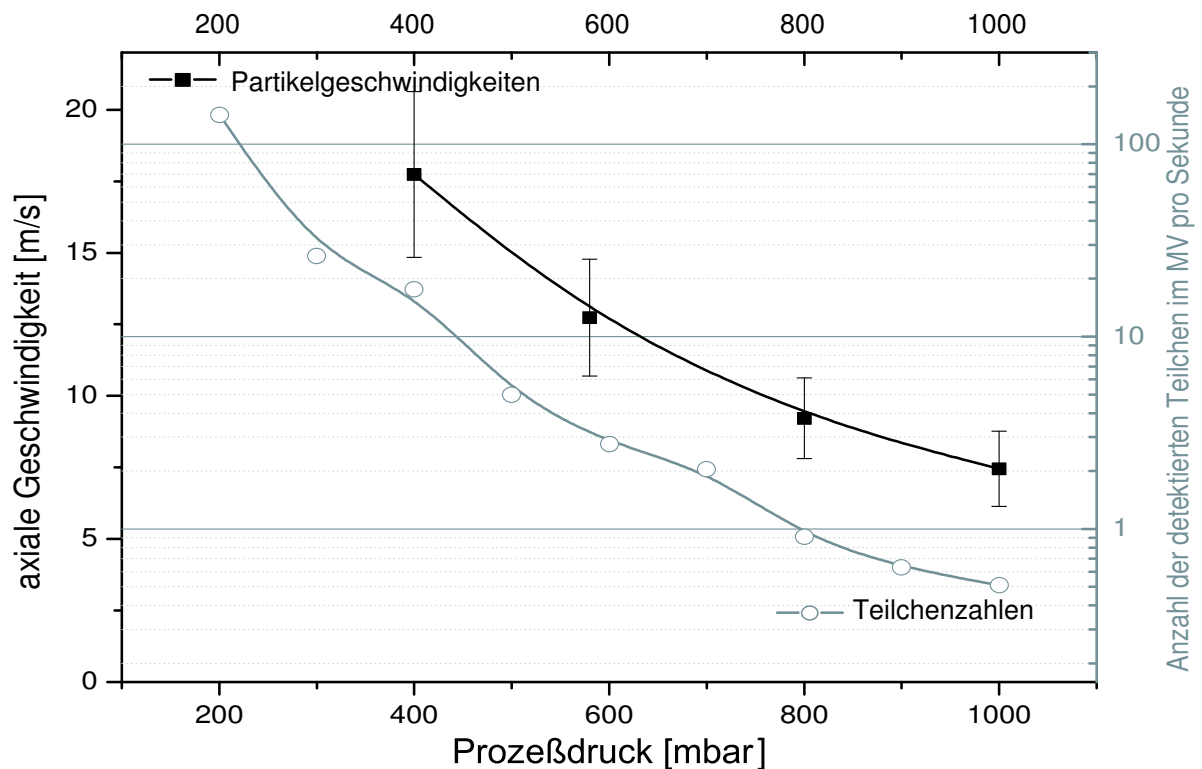
Die Variation des Prozeßdrucks hat (wie die des Trägergasstroms) einen starken Einfluß auf die Partikelgeschwindigkeiten. In Abbildung 6.10 ist eine Messung bei Einsatz des Scheibenträgerförderers und in 6.12 bei Einsatz des Fließbettförderers dargestellt.



**Abbildung 6.10:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten an verschiedenen axialen Positionen bei Variation des Entladungsdrucks (Scheibenträger, HF-Leistung: 10 kW, Trägergas: 5 slm, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).



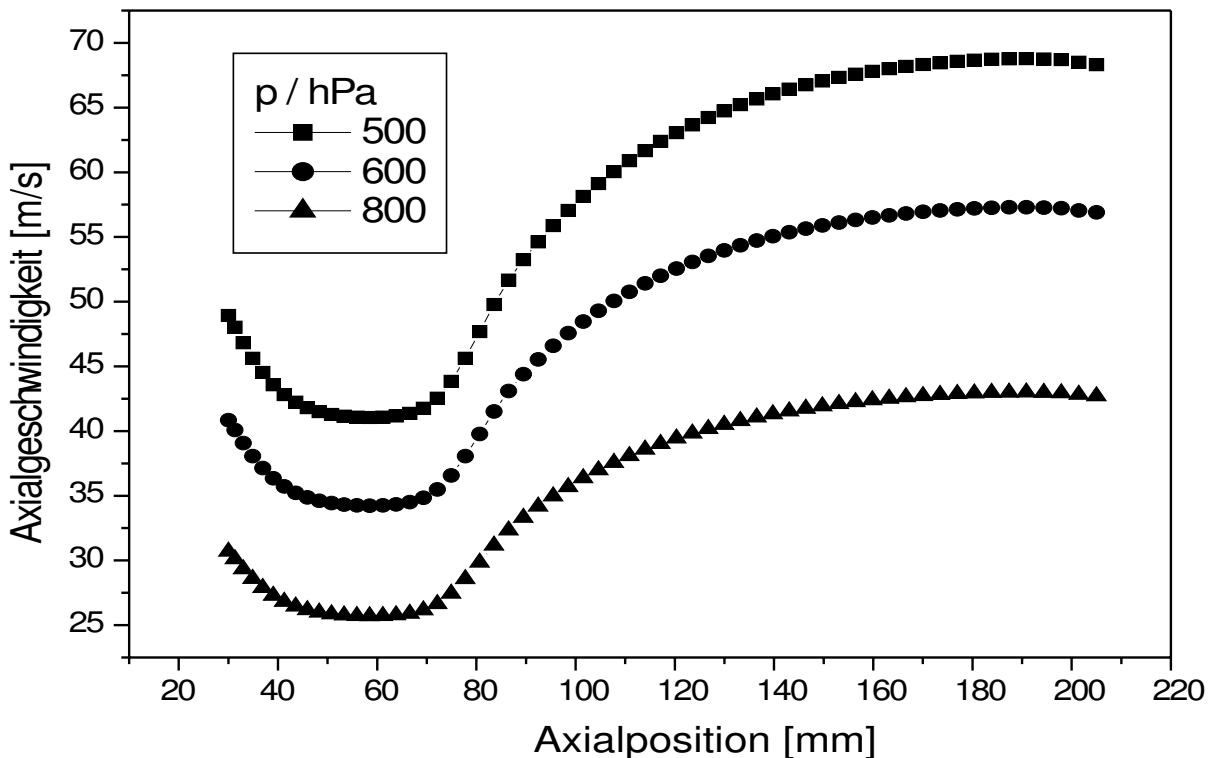
**Abbildung 6.11:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten mit Hilfe der Leuchtspurmethode bei Variation des Entladungsdrucks und Vergleich mit LDA-Messungen (sonstige Bedingungen wie in Abb. 6.10).



**Abbildung 6.12:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten bei Variation des Entladungsdrucks (Fließbettförderer, HF-Leistung: 10 kW, Trägergas: 1,5 slm, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 80 slm.)

In beiden Fällen ist der deutliche Abfall der Partikelgeschwindigkeiten bei Erhöhung des Entladungsdrucks erkennbar. In Abbildung 6.11 ist die Messung der Druckabhängigkeit mit Hilfe der Leuchtspurmethode dargestellt. Wie auch mit der LDA bestimmt, zeigt sich bei der Leuchtspurmessung mit steigendem Druck eine Abnahme der Partikelgeschwindigkeiten. Qualitativ stimmen die Messungen gut überein, wobei ein quantitativer Vergleich nicht möglich ist, da die Messungen an unterschiedlichen Positionen bei unterschiedlichen Bedingungen durchgeführt worden sind. Mit dem CFD-Code modellierte Gasgeschwindigkeiten in Abbildung 6.13 bestätigen dieses Verhalten. Die Auswirkungen der Druckvariation auf die Geschwindigkeiten sind wie auch in den Messungen unabhängig von der axialen Position. Auf Grund der höheren eingekoppelten Leistung bei den Modellrechnungen sind jedoch die absoluten Werte nicht vergleichbar. Die Druckerhöhung wirkt sich unter anderem positiv auf die Partikelverdampfung aus, da die Verweilzeiten der Partikel erhöht werden. In Abbildung 6.12 ist dieser Einfluß anhand der Abnahme der detektierten Teilchenzahlen deutlich zu erkennen. Dieses Ergebnis wird auch durch die

spektroskopischen Messungen in [Schu03] bestätigt.

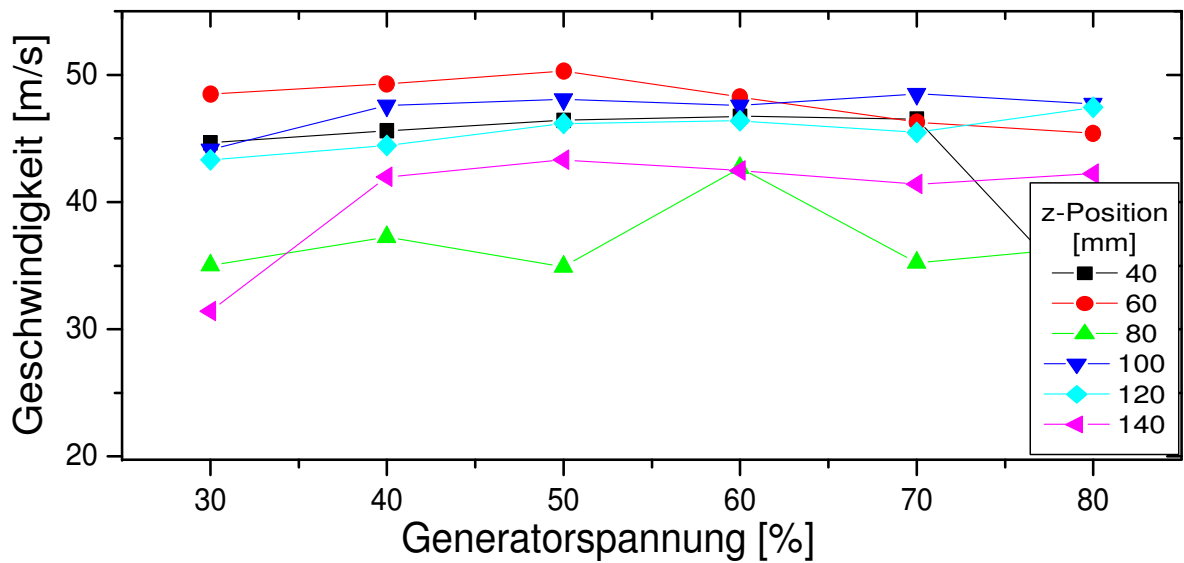


**Abbildung 6.13:** Modellierung der axialen Partikelgeschwindigkeiten bei Variation des Entladungsdrucks (5 slm Zentralgas, 3 slm Trägergas, 70 slm Mantelgas und 8 kW eingekoppelte HF-Leistung.)

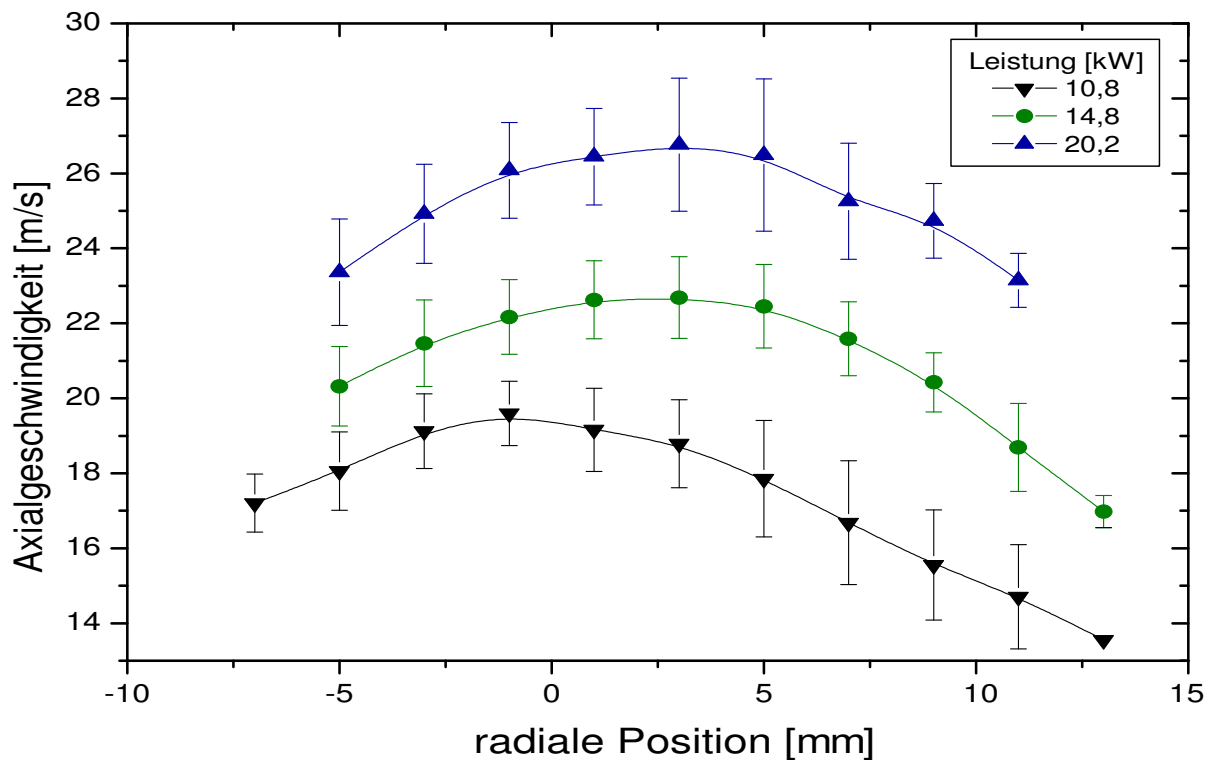
## 6.2 Einfluß von Leistung und Geometrie

### 6.2.1 Variation der HF-Leistung

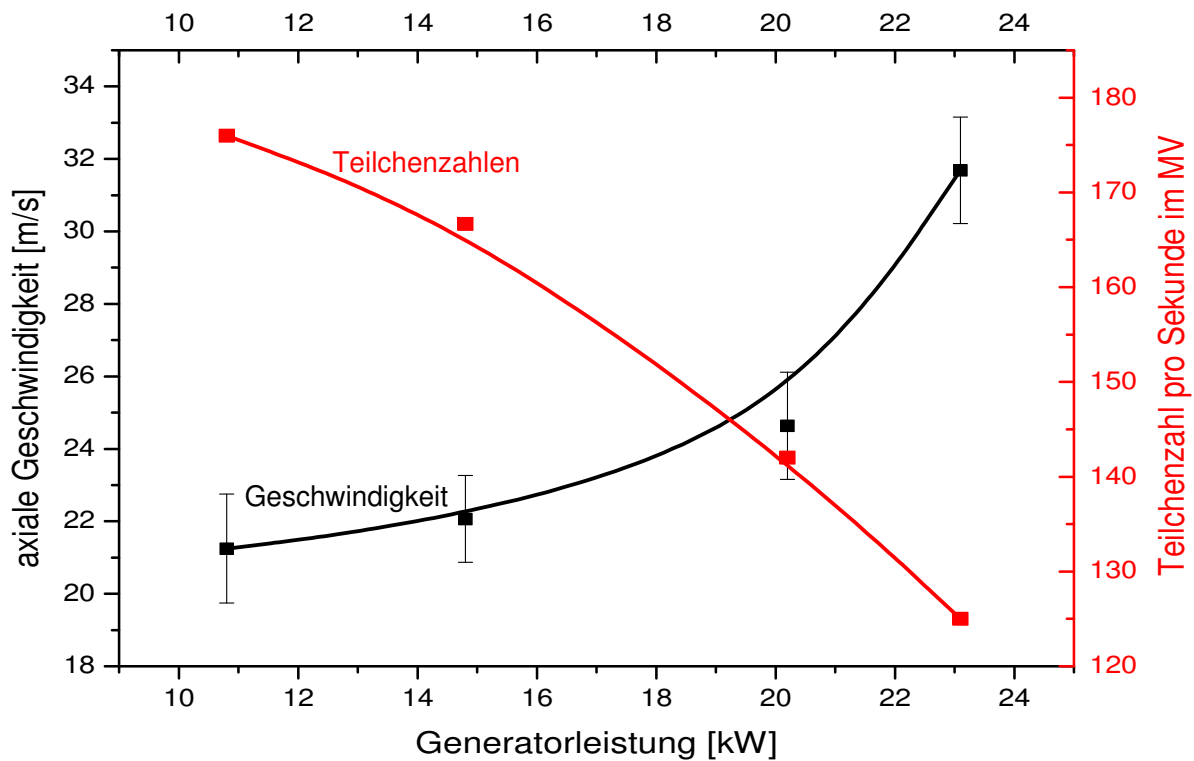
Der Einfluß der Generatorleistung auf die Geschwindigkeitsprofile ist in Abbildungen 6.14, 6.15 und 6.16 dargestellt. Zunächst zeigt sich, daß bei Einsatz des Scheibenförderers kaum ein Einfluß der Leistung erkennbar ist, wobei beim Fließbettförderer eine Steigerung der Partikelgeschwindigkeiten von 18 m/s auf 26 m/s bei Erhöhung der Generatorspannung von 10,8 kW auf 20,2 kW vorliegt. Dieses unterschiedliche Verhalten liegt wiederum an den kleineren Partikeln, die mit dem Fließbettförderer gefördert werden können, die somit besser dem Gasstrom folgen, und den zum Betrieb geringeren Trägergasmengen. Somit ist bei diesem Förderverfahren der Einfluß der Partikeleinbringung auf das Verhalten des Plasmas gering und auch geringfügige Änderungen der Geschwindigkeiten können detektiert werden.



**Abbildung 6.14:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten an verschiedenen axialen Positionen bei Variation der Generatorleistung zwischen 9 kW und 22 kW (entspricht 30% bis 80% Generatorspannung, Scheibenträger, Druck: 500 hPa, Trägergas: 5 slm, Zentralgas: 10 slm, Mantelgas: 60 slm).



**Abbildung 6.15:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten an verschiedenen radialen Positionen bei Variation der Generatorleistung (Fließbettförderer, Druck: 500 hPa, Trägergas: 1,5 slm, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 80 slm).



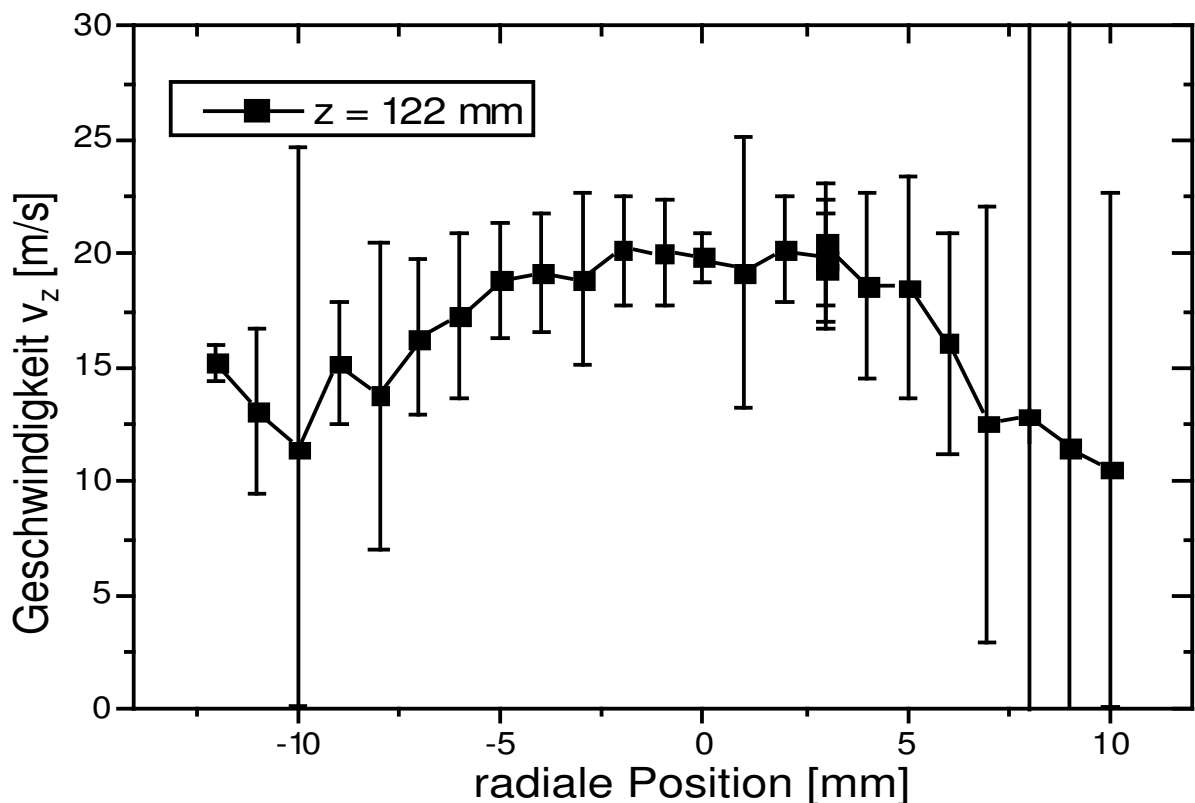
**Abbildung 6.16:** Messung der axialen Partikelgeschwindigkeiten und Partikelzahlen bei Variation der Generatorleistung (Fließbettförderer, Druck: 500 hPa, Trägergas: 1,5 slm, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 80 slm).

Beim Scheibenförderer folgen die größeren Partikel durch ihre Trägheit dem Gasstrom schlechter und können leichte Änderungen der Plasmagasgeschwindigkeiten nicht erfassen. Durch den höheren Trägergasstrom gleichen sich die Partikelgeschwindigkeiten erst spät die der Plasmagasgeschwindigkeiten an. Folglich kann bei Einsatz des Scheibenförderers kein Einfluß der Generatorleistung auf die Partikelgeschwindigkeiten festgestellt werden. In Abbildung 6.16 ist zudem eine Abnahme der detektierten Partikel mit zunehmender Generatorleistung erkennbar. Eine Verdopplung der Generatorleistung von 11 auf 23 kW bewirkt eine Abnahme der Zahl der detektierten Partikel um ca. 30%, was der mit der Spektroskopie gemessenen Dichtezunahme von Zirkonium entspricht. Bei Leistungsverdopplung kann also eine um ca. 30% verbesserte Verdampfung erzielt werden.

## 6.2.2 Umkehrströmung

Neben der konventionellen Art der Gasströmung wurden Experimente mit Umkehrströmung durchgeführt, siehe Abschnitt 2.1.6. Im folgenden sollen die Meßergebnisse an dieser Entladung vorgestellt werden. Bei der

Umkehrströmung wird das Arbeitsgas in einem Ring um den Plasmaausgang entgegen der normalen Strömungsrichtung eingeblasen. Im Zentralbereich sind am Plasmaende mittels LDA Partikel detektierbar, was auf eine unvollständige Verdampfung der eingebrachten, trockenen Pulver zurückzuführen ist. Die Geschwindigkeit der Teilchen beträgt dort ca. 20 m/s. Im Vergleich zur konventionellen Strömung, wo die Geschwindigkeiten bis zu 60 m/s betragen, können bei der Umkehrströmung auf Grund der kleineren Geschwindigkeiten längere Verweilzeiten erzielt werden. Dennoch sind die Verweilzeiten immer noch zu kurz, um eine vollständige Verdampfung zu erzielen. In Abbildung 6.17 ist ein solches Geschwindigkeitsprofil in Umkehrströmung dargestellt.



**Abbildung 6.17:** Partikelgeschwindigkeiten am Plasmaende bei Umkehrströmung (HF-Leistung: 10 kW, Druck: 1000 hPa Trägergas: 5 slm, Mantelgas: 100 slm).

Weitergehende Untersuchungen der Geschwindigkeiten erwiesen sich als schwierig, da durch wachsende Pulverablagerungen an der Wand des Quarzrohres die Messungen beeinträchtigt bzw. unmöglich wurden. Aus diesem Grunde konnten auch keine Messungen im Spulenbereich, wo die Ablagerungen am stärksten waren, durchgeführt werden. Somit ist es auch unmöglich, Aussagen über die Abnahme der Partikelzahlen zu treffen. Ins-

gesamt kann jedoch festgestellt werden, daß in keinem Falle eine vollständige Verdampfung erzielt werden konnte. Besonders die auftretenden technischen Probleme durch die Pulverablagerungen an der Wand des Entladungsrohres stellen einen großen Nachteil im Hinblick auf optische Meßverfahren dieser Strömungsgeometrie dar. Da auch mit Hilfe der Spektroskopie [Schu03] keine merklich verbesserte Partikelverdampfung nachgewiesen werden konnte, stellt die konventionelle Strömungsgeometrie weiterhin die günstigere Lösung dar.

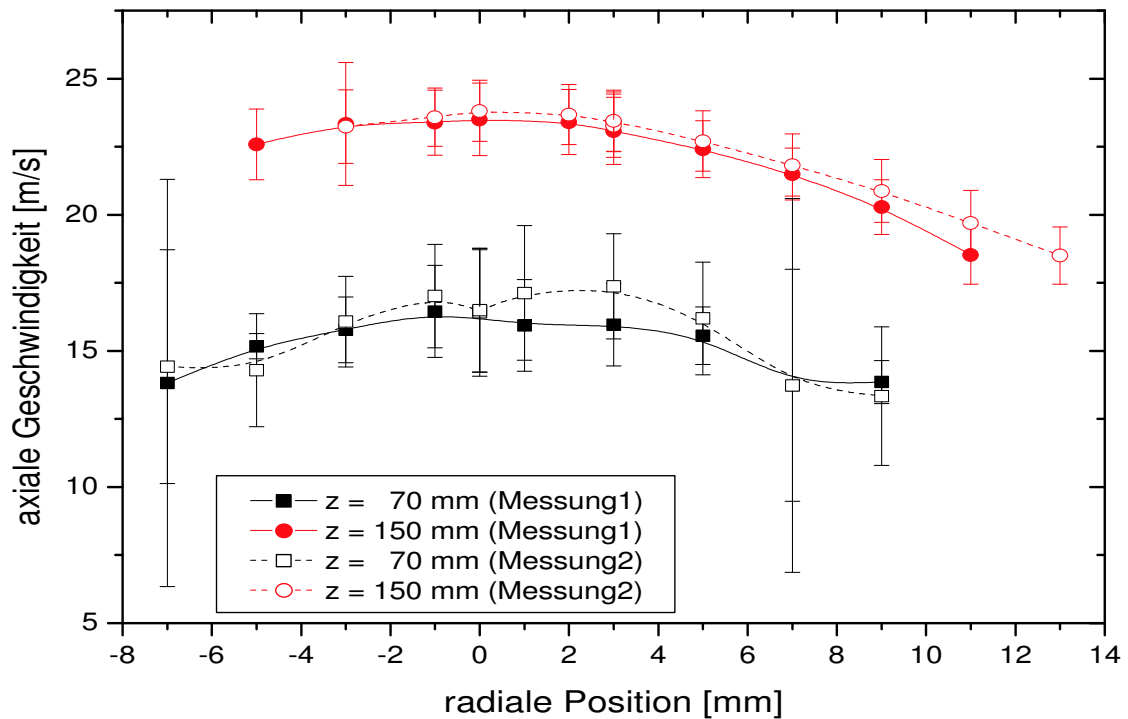
## 6.3 Vergleich der Fördermethoden

Im folgenden wird auf eine weiterführende Betrachtung des Scheibenförderers verzichtet, da die in Kapitel 5 und vorher in Kapitel 6 vorgestellten Ergebnisse im wesentlichen mit diesem durchgeführt wurden und diesen hinreichend beschreiben. Auf Grund seiner ungleichmäßigen Förderung und der vergleichsweise hohen Trägergasströme, die zum Betrieb nötig sind, bei dem gleichzeitig nur gröbere Pulvermischungen (minimal ca.  $15\ \mu\text{m}$ ) Verwendung finden können, wird für die Trockenförderung nur noch der Fließbettförderer untersucht. Für die Injektion von Flüssigkeiten werden alle drei im Abschnitt 2.2 vorgestellten Verfahren gegenübergestellt und die jeweiligen Vor- und Nachteile diskutiert.

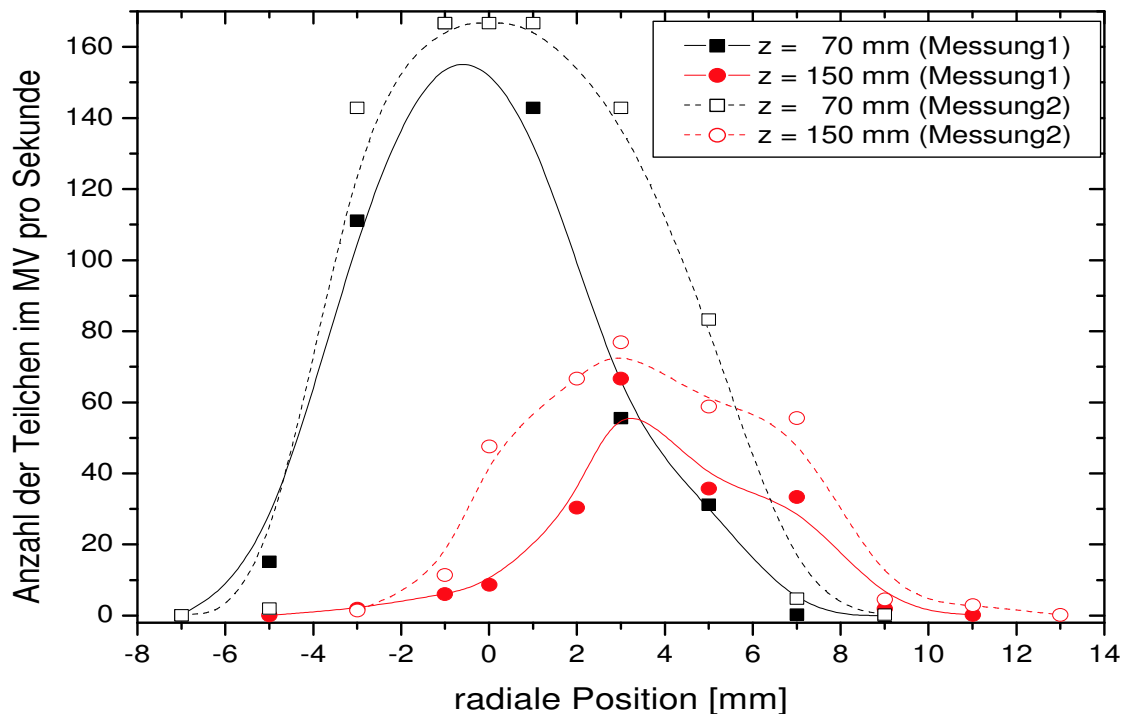
### 6.3.1 Fließbettförderer

Bei Einsatz des Fließbettförderers kann eine konstante und reproduzierbare Förderung von trockenen Pulvern erzielt werden, was durch wiederholte Messungen bestätigt wird. In Abbildung 6.18 ist die Geschwindigkeits- und in Abb. 6.19 die Anzahlverteilung unverdampfter Zirkondioxidpartikel im Plasma dargestellt. Die Geschwindigkeiten in Abbildung 6.18 steigen von  $15\ \text{m/s}$  am Beginn des Plasmas bis auf  $23\ \text{m/s}$  am Plasmaausgang an. Das radiale Maximum der Geschwindigkeit liegt jeweils bei  $0\ \text{mm}$  (Symmetrieachse des Plasmas). Die Geschwindigkeitsverteilung paßt sich zum Plasmaende der Strömungsgeschwindigkeit des Plasmas an und die gemessenen Partikelgeschwindigkeiten entsprechen denen der Plasmaströmung. In Abbildung 6.19 kann eine Abnahme der Partikelzahlen vom Plasmaanfang bis hin zum Plasmaende nachgewiesen werden. Auf dem Weg durch das Plasma nimmt die Zahl der nachgewiesenen Partikel um etwa 60% ab.



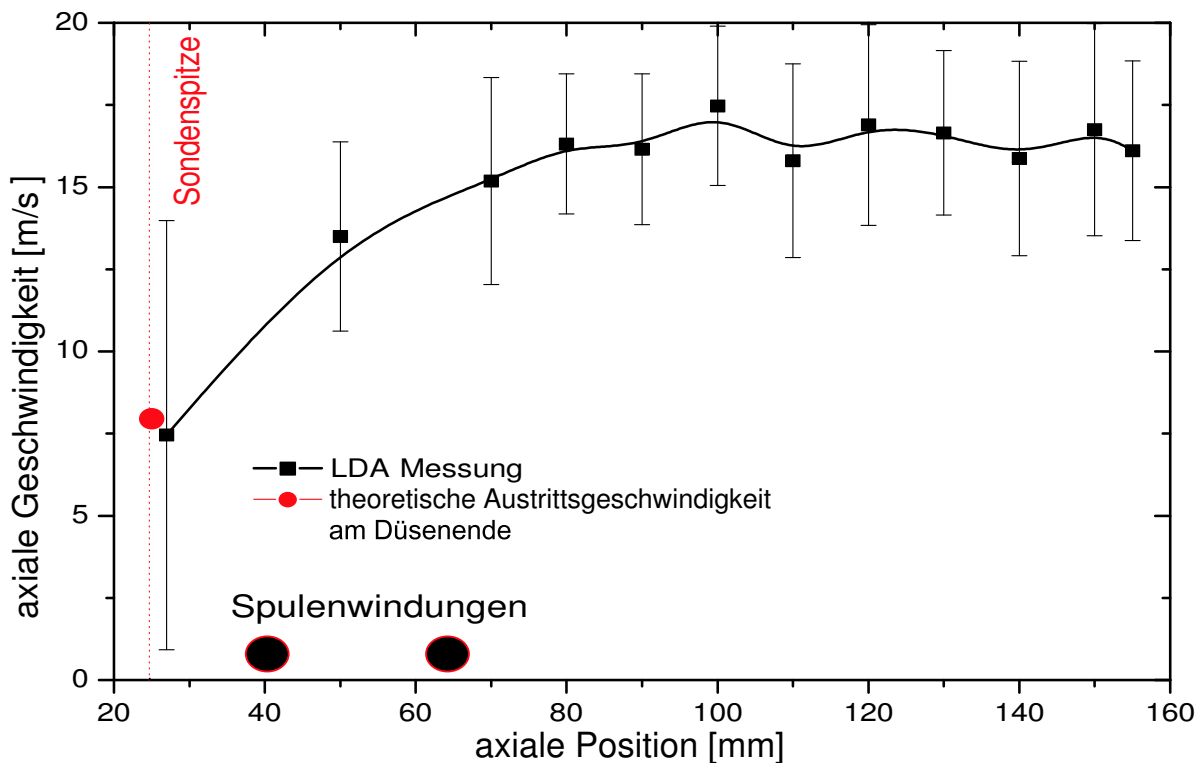


**Abbildung 6.18:** Radiale Geschwindigkeitsverteilung an zwei axialen Positionen mit Fließbettförderer ( $3\ \mu\text{m}$   $\text{ZrO}_2$ -Pulver, HF-Leistung: 10 kW, Druck: 500 hPa, Trägergas: 1,5 slm, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).



**Abbildung 6.19:** Radiale Verteilung der detektierten Partikelzahlen an zwei axialen Positionen (Bedingungen wie in Abbildung 6.18).

Diese Abnahme der detektierten Teilchen im Meßvolumen kann zum einen auf verdampfte Partikel bzw. auf Partikel, deren Radius auf Werte kleiner als die Detektionsgrenze geworden ist, und zum anderen auf die Verbreiterung des Partikeljets zum Plasmaende hin von ca. 16 mm auf 18 mm zurückgeführt werden. Es ist zu beobachten, daß der Partikeljet im Plasma helisch gewunden ist, so daß sich das Maximum der Partikelverteilung vom Plasmaeintritt bis zum Ende hin um 4 mm verschiebt. Im Gegensatz dazu gibt es keine Verschiebung des Geschwindigkeitsmaximums, was an beiden dargestellten axialen Positionen erkennbar ist, woraus ersichtlich wird, daß die gemessenen Geschwindigkeiten an beiden Positionen nahezu bzw. gleich der Plasmageschwindigkeiten sind. Die Geschwindigkeiten steigen von maximal 15 m/s bis auf 25 m/s im Zentralbereich. Der axiale Verlauf der Partikelgeschwindigkeiten ist noch einmal gesondert in Abbildung 6.20 dargestellt.



**Abbildung 6.20:** Axiale Geschwindigkeitsverteilung mit Fließbettförderer ( 1 slm Trägergas, alle anderen Bedingungen wie in Abbildung 6.18 und 6.19).

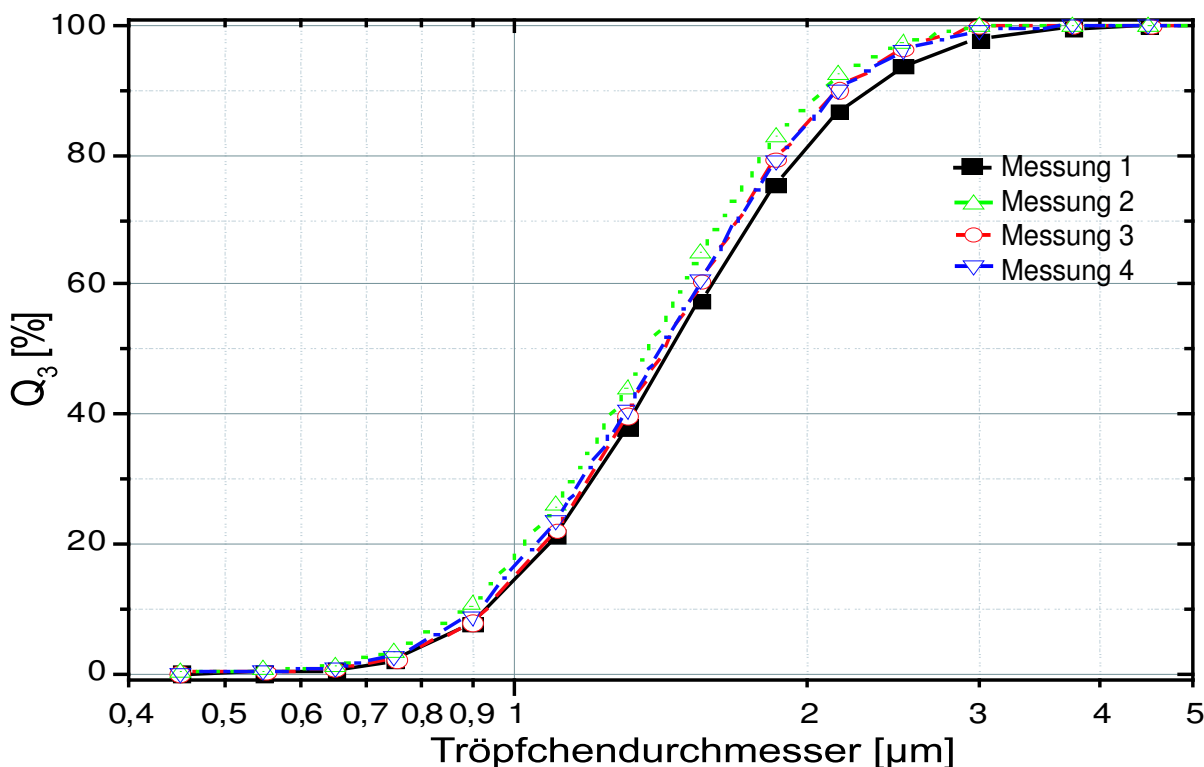
Die Geschwindigkeit steigt von der Austrittsgeschwindigkeit an der Düse von 8 ms (was der Anhand der Düsenöffnung und Durchflußrate berechneten theoretischen Ausflußgeschwindigkeit entspricht) bis auf maximal 17 m/s in der Plasmaströmung. Trotz der geringen Trägergasmengen mit

den resultierenden kleinen Geschwindigkeiten und der feinen Partikelgrößenverteilung war keine vollständige Verdampfung der eingebrachten  $\text{ZrO}_2$ -Partikel möglich, da bis zum Ende hin viele Partikel nachweisbar waren. Diese Messungen unterstreichen die in Kapitel 4 gewonnenen Ergebnisse. Dennoch konnten mit dem Fließbettförderer im Gegensatz zum Scheibenförderer deutliche Fortschritte erzielt werden, da die 3 wichtigsten Zielsetzungen erfüllt wurden:

- Reduktion der nötigen Trägergasmenge
- Förderung von feineren Pulvern möglich
- stabile Förderung wird gewährleistet.

### 6.3.2 Aerosolgenerator

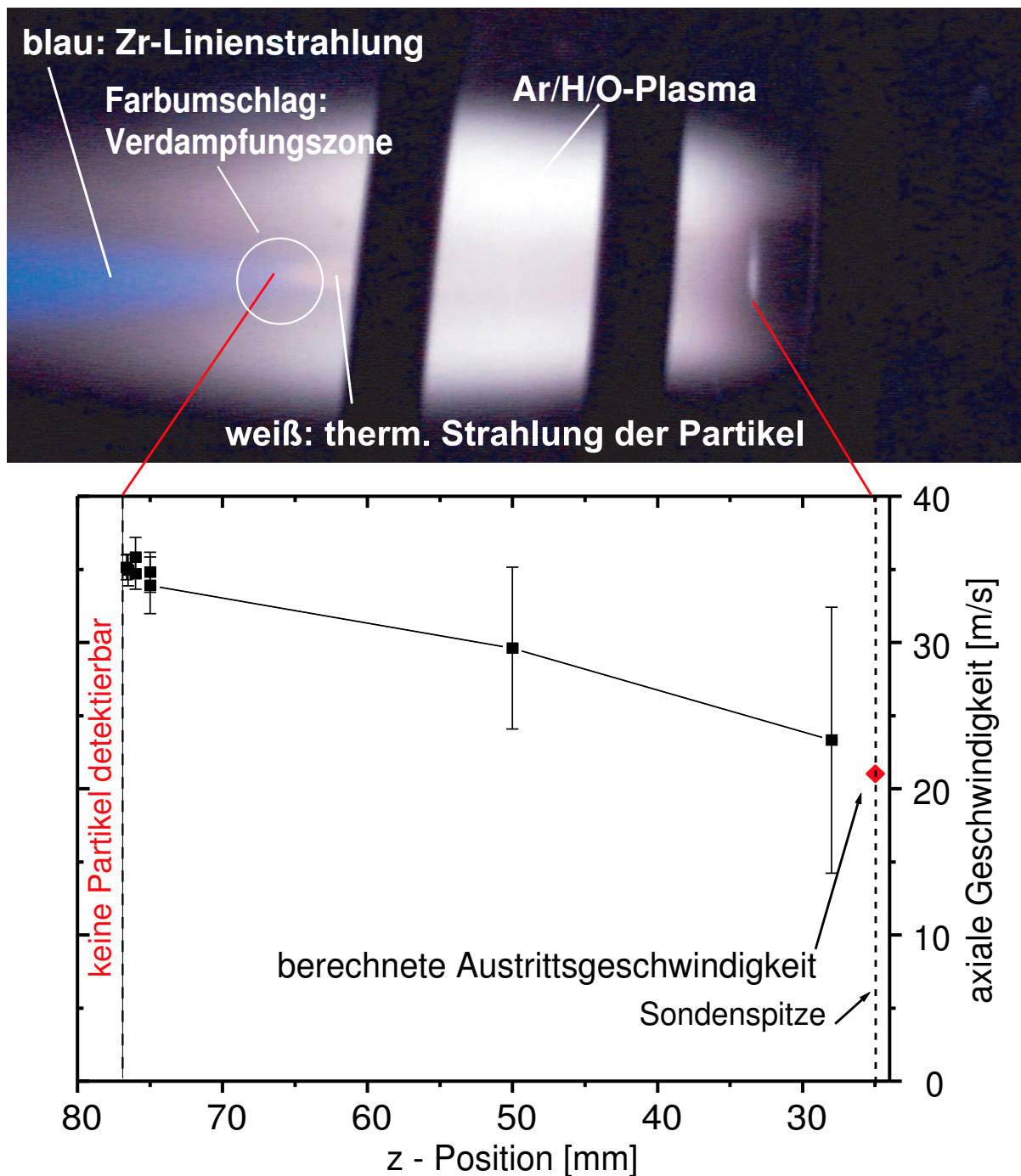
Für die ersten Versuche mit flüssigen Ausgangsmaterialien kam der externe Vernebler bzw. Aerosolgenerator, siehe Abschnitt 2.2.2, zum Einsatz. Vor der Einbringung ins Plasma ist dessen Förderverhalten in Luft charakterisiert worden. Dazu wurden Partikelgrößenmessungen mit einem von der Firma Sympatec zur Verfügung gestellten Partikelanalysator durchgeführt. Das dabei verwendete Meßverfahren beruht auf der FRAUNHOFER-Beugung von Laserlicht an Partikeln. Ein aufgeweiteter Laserstrahl beleuchtet einen mit Partikeln beladenen Gas- oder Dampfstrahl bzw. Spray, und wird anschließend mit einer Linse auf einen im Brennpunkt befindlichen Schirm fokussiert. Auf dem Schirm, in dem sich in der Mitte ein Loch für den Laserstrahl befindet, ist die Überlagerung der Beugungsringe erkennbar und kann anhand der Intensitätsverteilung zur Größenanalyse herangezogen werden. Eine genaue Beschreibung des Geräts und Meßverfahrens findet sich in den Produktbeschreibungen der Firma Sympatec [Symp99] sowie in [Heue83]. Die Tröpfchengrößenverteilung ist in Abbildung 6.21 dargestellt. Das durch den Vernebler erzeugte Flüssigkeitsspray weist im Vergleich mit anderen Methoden eine sehr feine Tröpfchengrößenverteilung auf. Alle Tropfen sind kleiner als  $4\ \mu\text{m}$  und 50% sind kleiner als  $1,4\ \mu\text{m}$ . Dies sind sehr gute Voraussetzungen für eine vollständige Verdampfung im Plasma, die im folgenden untersucht wird.



**Abbildung 6.21:** Suspensionsförderung mit Aerosolgenerator, Größenmessung in Luft (Suspension von  $1\ \mu\text{m}$ - $\text{ZrO}_2$ -Pulver in Wasser, 2 slm Trägergas).

In Abbildung 6.22 ist im oberen Teil ein Foto des Plasmas bei Einsatz des externen Verneblers zur Einbringung von in Wasser suspendiertes Zirkondioxidpulver<sup>1</sup> mit einer mittleren Teilchengröße kleiner  $1\ \mu\text{m}$  dargestellt. Beim Eintritt in das Plasma ist ein weißer, auf die thermische Strahlung der Partikel zurückzuführender Bereich des Injektionskanals erkennbar. Dann schlägt der Partikelstrahl plötzlich in einen blauen Bereich um, was auf eine Verdampfung von Zirkonium (starke Linienstrahlung bei u.a.  $535\ \text{nm}$ ) zurückzuführen ist. Diese Beobachtung wird im unteren Teil der Abbildung 6.22 durch LDA-Messungen weitergehend untersucht. Die Partikelgeschwindigkeiten steigen von der theoretischen Austrittsgeschwindigkeit an der Düse von  $22\ \text{m/s}$  ausgehend bis  $35\ \text{m/s}$  im Plasma an. Gleichzeitig sinkt die Zahl der detektierten Partikel, bis bei einer  $z$ -Position von  $77\ \text{mm}$  keine Partikel (und damit auch keine Geschwindigkeiten) mehr nachweisbar sind. Das heißt, ab dieser  $z$ -Position sind alle Tropfen soweit ver- bzw. abgedampft, daß sie unterhalb der Detektionsgrenze des LDA-Systems von etwa  $1\ \mu\text{m}$  liegen.

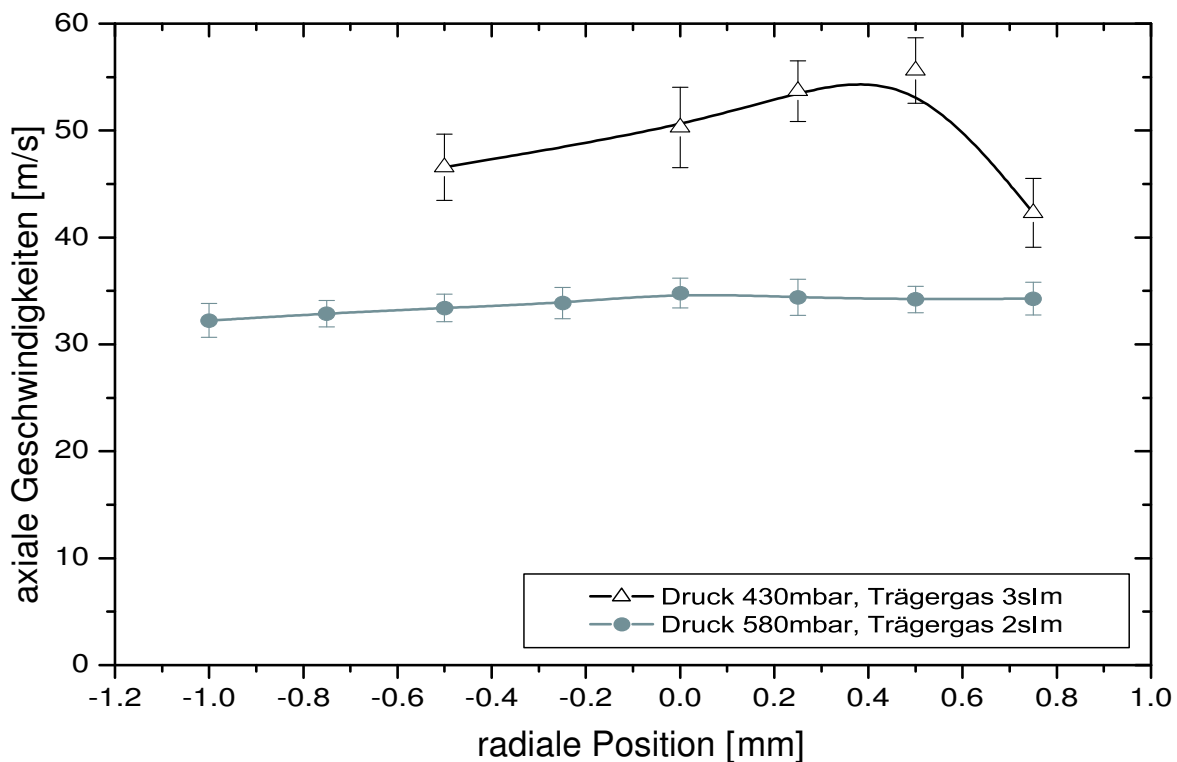
<sup>1</sup>Yttrium stabilisiert, Unitec Ceramics, Stafford, UK



**Abbildung 6.22:** Suspensionsförderung mit Aerosolgenerator, Kamerabild (oben) und LDA-Messungen (unten); (Suspension von  $1\ \mu\text{m}$ -ZrO<sub>2</sub>-Pulver in Wasser, 60 slm Mantel-, 10 slm Zentral-, 2 slm Trägergas, 580 hPa, 14,4 kW).

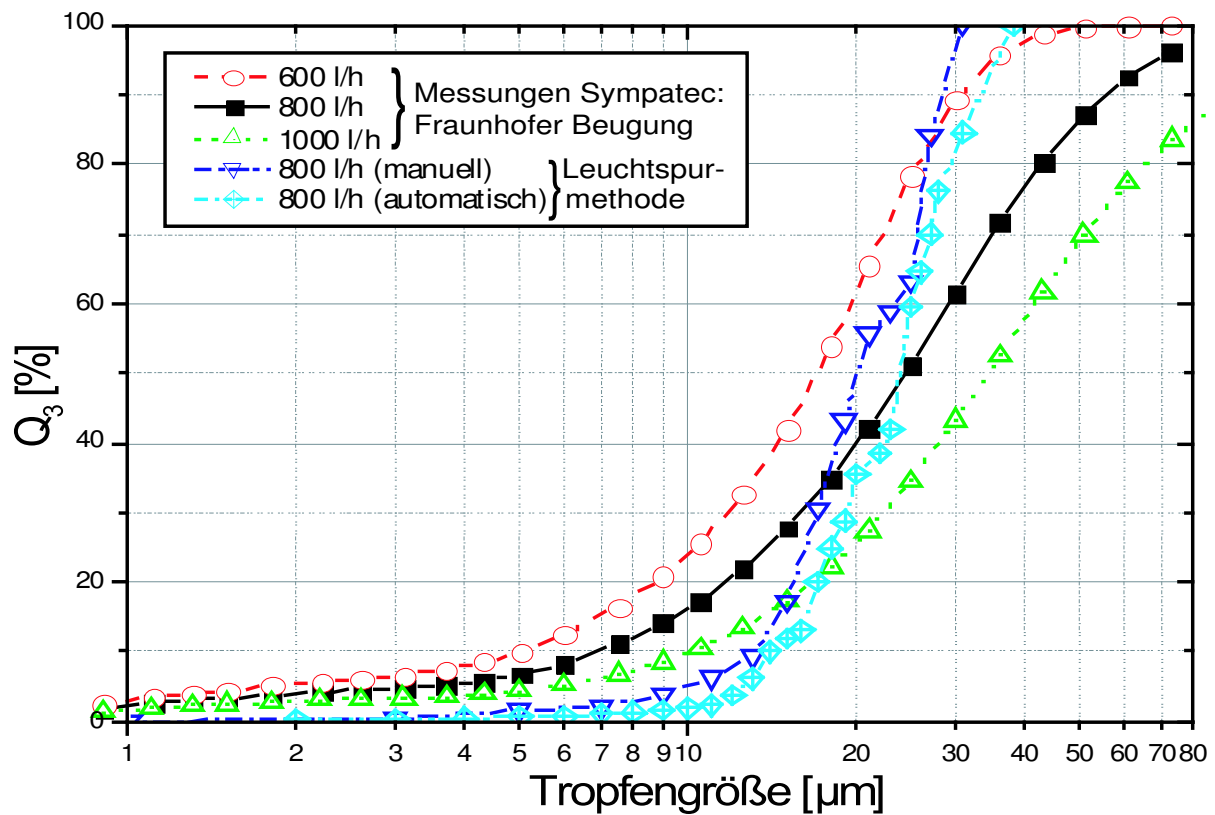
Ob die Verdampfung vollständig ist, kann so nicht weiter geklärt werden, aber ein Vergleich mit den Simulationsrechnungen in Kapitel 4 läßt die starke Vermutung zu, daß zumindest der größte Teil der eingebrachten Lösung verdampft wird. Auffällig im axialen Geschwindigkeitsverlauf ist

die breite Verteilung der Geschwindigkeiten direkt hinter der Sonde (erkennbar an den breiten Balken an den Meßwerten), was darauf zurück zu führen ist, daß die sich ausbildende Strömung der Partikel noch nicht stabil ist, da hier das (langsame) kalte Trägergas in die heiße Plasmaströmung eintritt. Der schmale Partikeljet weitet erst minimal auf und verengt sich dann zur Plasmazone hin. Die Breite des Partikelstroms wird auch durch den Entladungsdruck und die Trägergasgeschwindigkeit beeinflusst. Zwei radiale Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeiten finden sich in Abbildung 6.23. Zudem wird die bereits von den Trockenfördersystemen bekannte Abhängigkeit von Druck und Trägergas bestätigt. Auf Grund der geringeren Teilchengröße ist theoretisch und auch praktisch mit diesem Förderer eine vollständige Verdampfung der Suspensionen möglich. Die Nachteile liegen in der konstruktionsbedingten Anfälligkeit des Systems in Hinblick auf Verstopfungen an der Blende des Aerosolgenerators (Abbildung 2.9) beim Einsatz von Lösungen und Suspensionen und in den sehr geringen Fördermengen, die eine wirtschaftliche Einsetzbarkeit bei diesem Verfahren in Frage stellen.



**Abbildung 6.23:** Suspensionsförderung von  $1\ \mu\text{m}$ -ZrO<sub>2</sub> Pulver in Wasser mit Aerosolgenerator: Radialprofile axialer Geschwindigkeiten bei  $z=75\ \text{mm}$  (Mantelgas: 60 slm, Zentralgas: 4 slm, Druck und Trägergas im Bild).

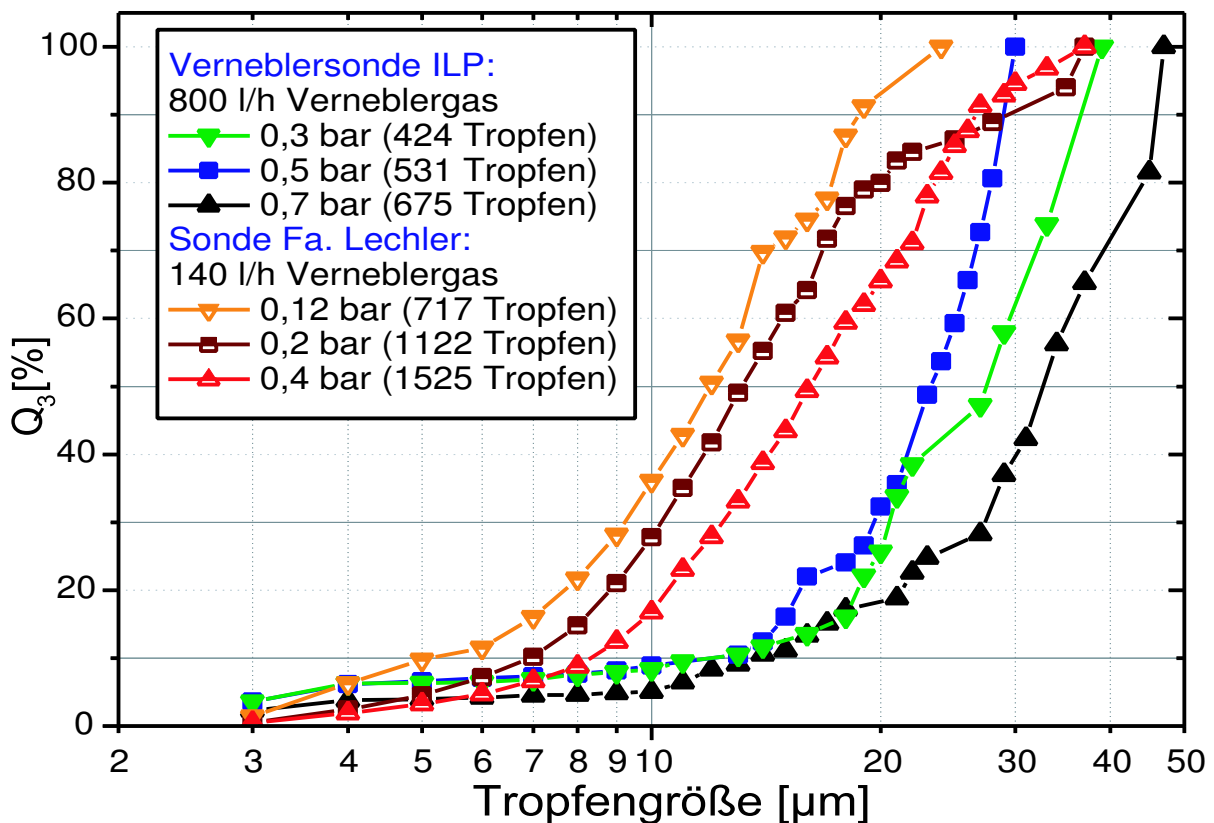
## 6.3.3 Verneblersonde



**Abbildung 6.24:** Tropfengrößenbestimmung der Verneblersonde: Vergleich von Messungen mit der Fraunhofer-Methode und der Leuchtspurmethode bei verschiedenen Gasmengen (Vernebelung von wässriger Suspension von  $1\ \mu\text{m}$   $\text{ZrO}_2$ -Pulver mit Atomizer-Sonde,  $800\ \text{l/h}$  Verneblergas,  $2,0\ \text{mm}$  innere Rohrposition).

Das Funktionsprinzip der Verneblersonde wurde in Abschnitt 2.2 beschrieben. Vor dem Einsatz im Plasmabetrieb wird die Spraycharakteristik in Luft untersucht. In Abbildung 6.24 sind Tröpfchengrößenmessungen mit dem im vorigen Abschnitt vorgestellten Gerät der Firma Sympatec und mit Hilfe der Leuchtspurmessungen durchgeführt wurden. Somit können beide Meßverfahren gut verglichen werden und bestätigt die mit der Leuchtspurmethode gewonnenen Meßergebnisse, da mit beiden Verfahren vergleichbare Größenverteilungen gemessen wurden. Beim Verfahren der FRAUNHOFER-Beugung treten im Gegensatz zur Leuchtspurmethode auch größere Tropfen in der Größenverteilung auf. Dies liegt an der Routine zur Auswertung der gewonnenen Daten der FRAUNHOFER-Beugung, die über die gewonnenen Ergebnisse eine bimodale Größenverteilung annimmt. Da die bestimmten Größen aber alle in einem engen Bereich liegen führt dies zu einem Fehler, da wie die Leuchtspurmessung zeigt, große Tropfen in endlicher

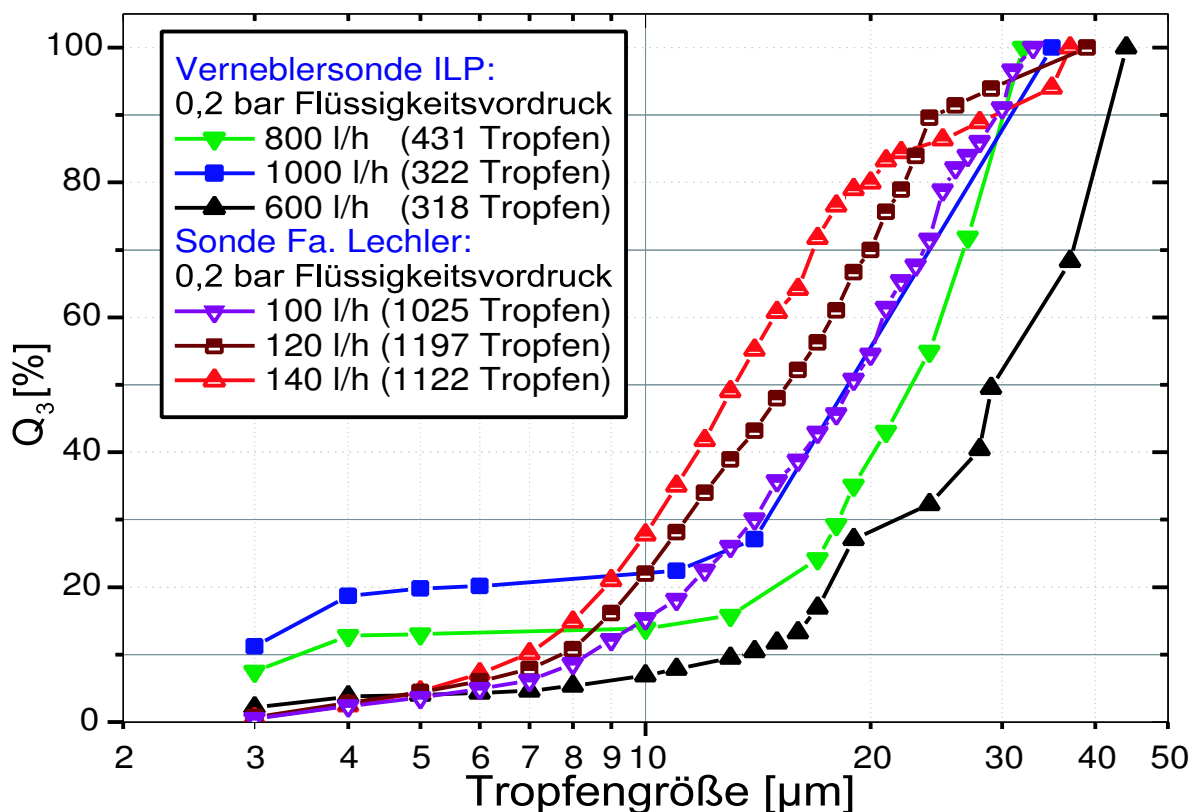
Zeit nicht auftreten. Weiterhin ist auch ein Vergleich einer manuellen Auswertung der Tröpfchengrößen mit einer automatisierten dargestellt. Beide Verfahren zur Auswertung der Leuchtspuren liefern gleiche Ergebnisse, was die Richtigkeit des Bilderkennungsverfahrens und der Auswertungsroutine bestätigt. Auf eine zeitaufwendige manuelle Einzelbildauswertung kann also verzichtet werden. Im folgenden werden Messungen an zwei Sonden dieses Typs vorgestellt: eine am Institut für Laser- und Plasmaphysik (ILP) entwickelte Sonde und zum Vergleich eine bei der Firma Lechler erworbene Sonde. Bei beiden Sonden werden die Flüssigkeitsmengen durch den Vordruck am Vorratsgefäß eingestellt. Die Sonden unterscheiden sich durch den Blendendurchmesser, der bei der Sonde der Firma Lechler etwas größer als bei der ILP- Sonde ausfällt und durch den Durchmesser des inneren (Flüssigkeits-) Rohres. Dadurch sind zum Betrieb der Lechler-Sonde geringere Gasströme nötig, wobei gleichzeitig eine etwa um einen Faktor 2 größere Förderrate erzielt wird. Die vom Flüssigkeitsvordruck (und damit von der geförderten Flüssigkeitsmenge) abhängigen Tröpfchengrößen sind in Abbildung 6.25 dargestellt.



**Abbildung 6.25:** Tröpfchengrößenverteilung: Vergleich der Verneblersonden bei Variation des Flüssigkeitsvordrucks.

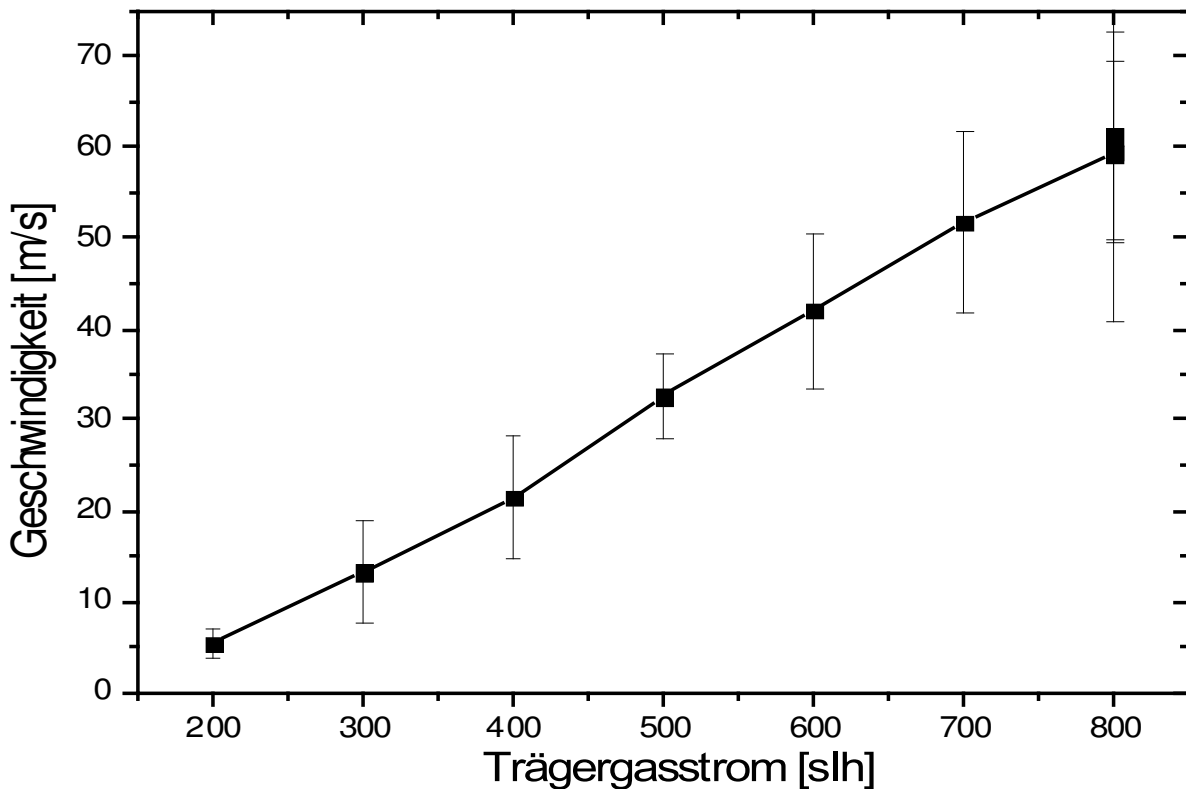


Bei Erhöhung der Flüssigkeitsmenge durch Erhöhung des Flüssigkeitsvordrucks steigt die mittlere Tröpfchengröße. Bei der ILP-Sonde um ca.  $10\ \mu\text{m}$  von  $22\ \mu\text{m}$  auf  $32\ \mu\text{m}$  und bei der Lechler-Sonde um ca.  $5\ \mu\text{m}$  von  $11\ \mu\text{m}$  auf  $16\ \mu\text{m}$ . Eine Erhöhung des Flüssigkeitsvordrucks an der ILP-Sonde von 0,3 auf 0,7 bar erhöht die geförderte Flüssigkeitsmenge um 60 %. Bei der Lechler-Sonde bewirkt eine Druckerhöhung von 0,12 auf 0,4 bar eine Verdopplung der geförderten Flüssigkeitsmenge. Bei beiden Sonden ist der Einfluß auf die Förderrate deutlich größer als auf die Partikelgröße. Da, wie sich mit den Messungen im Plasma herausstellt, beide Sonden durch die verhältnismäßig hohen Flüssigkeitsmengen das Plasma auslöchen können, ist – auch um eine möglichst kleine Tropfengröße zu erzielen – der Flüssigkeitsvordruck minimal zu wählen, so daß gerade noch eine Förderung möglich ist. Der optimale Vordruck beträgt bei der Lechler-Sonde etwa 0,12 bar und bei der ILP-Sonde 0,2 bar. Der Einfluß des zum Betrieb der Sonde nötigen Trägergasstroms ist in Abbildung 6.26 dargestellt. Die angegebenen Trägergasmengen sind keine Absolutwerte, da zur Gasflußmessung Rotameter verwendet wurden, die vom Druck abhängig sind.



**Abbildung 6.26:** Tröpfchengrößenverteilung: Vergleich der Verneblersonden bei Variation des Trägergases.

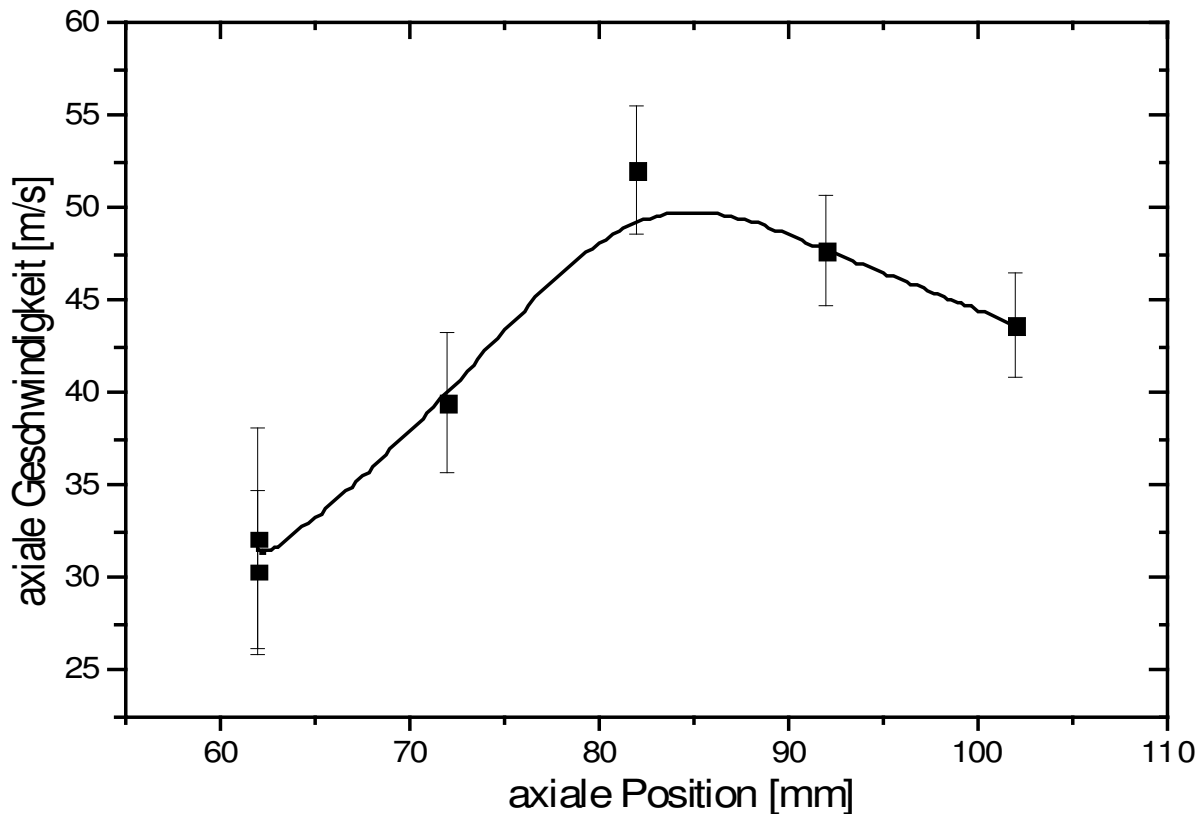
Eine Erhöhung des Trägergasstroms bewirkt eine Reduktion der mittleren Tropfendurchmesser: von 19 auf 12  $\mu\text{m}$  bei Flußerhöhung von 100 auf 140 slm (Sonde Lechler), bzw. von 30 auf 19  $\mu\text{m}$  bei einer Flußerhöhung von 600 auf 1000 slm (Sonde ILP). Die anhand der Einstellmöglichkeiten (Flüssigkeitsvordruck und Trägergasfluß) möglichen Tröpfchengrößen liegen bei 10 - 20  $\mu\text{m}$  bei der Sonde der Firma Lechler und bei 15 - 30  $\mu\text{m}$  bei der Sonde des ILP. In den folgenden Messungen der ILP-Sonde im Plasma-betrieb erweist sich gerade der nötige Trägergasstrom als Schwachstelle des Förderprinzips. Die Abhängigkeit der Geschwindigkeit von Wassertropfen im Plasma von der eingestellten Trägergasmenge ist in Abbildung 6.27 dargestellt.



**Abbildung 6.27:** Axiale Geschwindigkeit von Wassertropfen im HF-Plasma bei Variation des Trägergasstroms (500 hPa Prozeßdruck, 0,2 bar Flüssigkeitsdruck, 80 slm Mantelgas, 6 slm Zentralgas).

Es zeigt sich eine lineare Abhängigkeit der Tröpfchengeschwindigkeit, die von 5 m/s bei 200 slh auf 60 m/s bei 1000 slh ansteigt. Die kleinen Tröpfchen, die man durch einen hohen Trägergasstrom erzeugen kann, können auf Grund ihrer hohen Geschwindigkeiten und damit viel zu geringen Verweilzeiten nicht mehr verdampfen. Wählt man einen Mittelweg bei z.B. 500 slh sind die Tröpfchengrößen bereits in einem Bereich von 30  $\mu\text{m}$

bei einer immer noch verhältnismäßig hohen Partikelgeschwindigkeit von 35 m/s. Hinzu kommt der Aspekt, daß das eingeblasene Trägergas eine kühlende Wirkung auf den Zentralbereich des Plasmas ausübt und somit der bereits beschriebene kalte Kanal entsteht bzw. verstärkt wird.



**Abbildung 6.28:** Axiale Geschwindigkeit von Wassertropfen im HF-Plasma an verschiedenen z-Positionen (600 slh Trägergas, 540 hPa Prozeßdruck, 0,2 bar Flüssigkeitsdruck, 60 slm Mantelgas, 8 slm Zentralgas).

Letztlich wird noch der axiale Verlauf der Tropfengeschwindigkeiten vermessen; dieser ist in Abbildung 6.28 aufgetragen. Wie auch bei der Messung mit trockenem Pulver steigt zunächst die Partikelgeschwindigkeit von 30 bis auf 50 m/s an (was auf die durch die Zugabe von Wasser erhöhten Plasmatemperaturen und damit Strömungsgeschwindigkeiten zurückzuführen ist), und fällt dann zum Plasmaende hin (mit abnehmenden Plasmatemperaturen) bis auf 40 m/s ab. Die Abhängigkeit der Geschwindigkeit der Tropfen von den Plasmaparametern Entladungsdruck, Zentralgas, Mantelgas und HF-Leistung wurde ebenfalls untersucht, bringt aber im Vergleich zu den mit Hilfe der Trockenförderung bereits gewonnenen Ergebnissen keine neuen Erkenntnisse. Mit der Verneblersonde lassen sich flüssige Ausgangsmaterialien mit hohen Förderraten ins Plasma ein-

bringen, was jedoch einerseits eine zu starke Last für das Plasma darstellen kann und andererseits durch die vergleichsweise hohen Geschwindigkeiten nachteilig auf die Verdampfung wirkt. Die Tropfengrößen sind dabei um eine Größenordnung größer als beim Prinzip des externen Verneblers.

### 6.3.4 Hochdruckverneblung

In Abbildung 6.29 ist, ausgehend von  $p = 35$  bar, die Vermessung von Tropfengrößen und Geschwindigkeiten für verschiedene Druckbedingungen bis hin zu  $p = 80$  bar dargestellt. Mit steigendem Druck steigen die Partikelgeschwindigkeiten von 28 m/s auf 38 m/s, was mit den in Kapitel 2, Abbildung 2.11 dargestellten theoretischen Werten gut übereinstimmt. Der gemessene mittlere Teilchendurchmesser sinkt gleichzeitig von  $40 \mu\text{m}$  auf  $18 \mu\text{m}$ , was ebenfalls von der Theorie vorhergesagt wird. Höhere Drücke wirken sich positiv durch die Reduktion der Partikelgröße aus, wobei gleichzeitig die Tröpfchengeschwindigkeiten und Fördermenge steigen, was sich wiederum negativ auf die Verdampfung auswirkt. Daher ist es entscheidend, einen optimalen Druck zu wählen, bei dem bei möglichst kleinen Tröpfchen die Geschwindigkeiten und Förderraten verhältnismäßig gering bleiben. Dies ist für eine 1 mm lange Kapillare mit einem Innendurchmesser von  $45 \mu\text{m}$  in dem gewählten Druckbereich von 60 - 100 bar am besten gewährleistet.

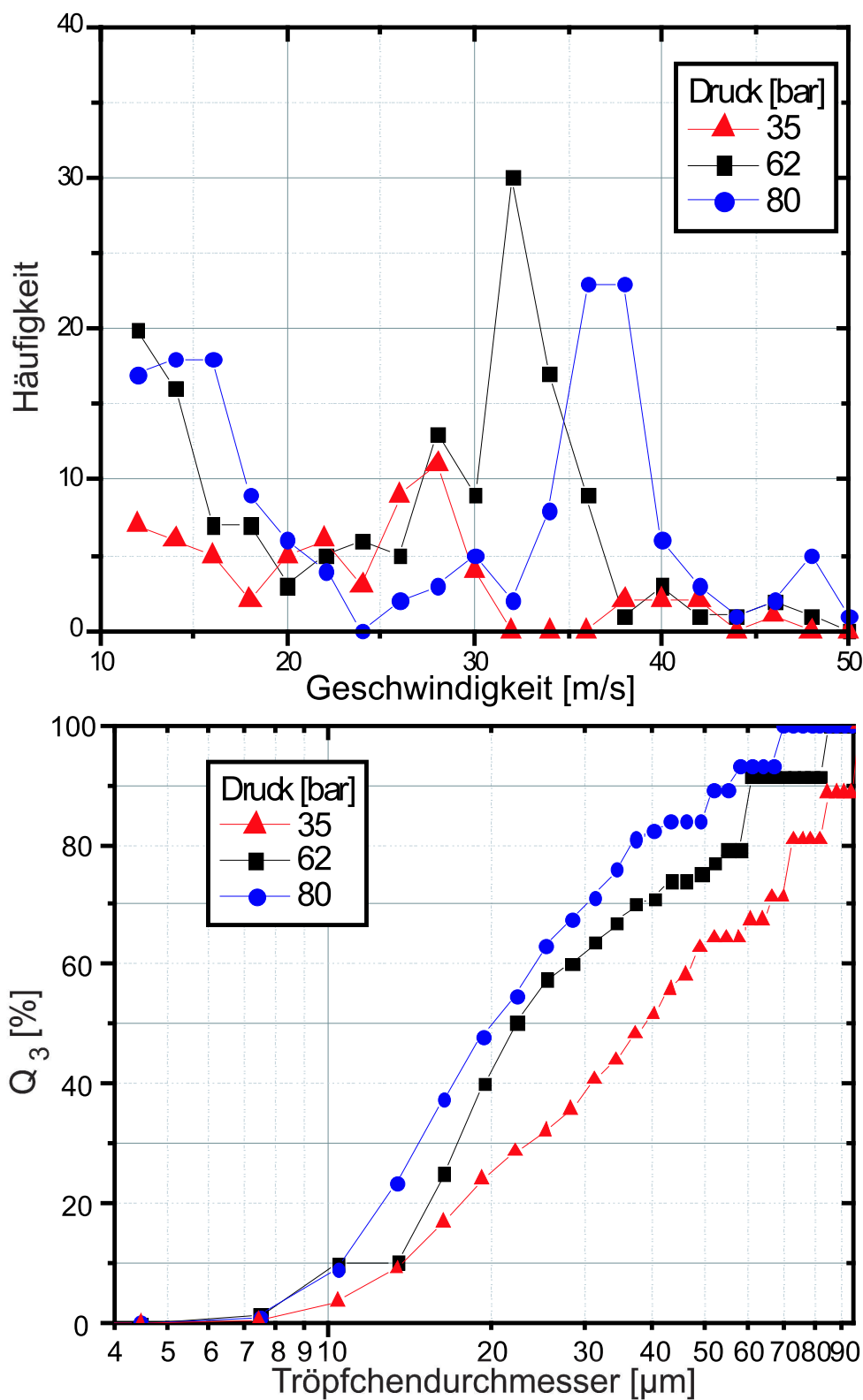
Bei der Untersuchung der Tropfengrößen im Hochdruckfreistrahle wurde mit Hilfe des Einsatzes von Tensiden<sup>2</sup> die Oberflächenspannung und damit die resultierende Tröpfchengröße reduziert. Um Aerosole mit möglichst geringem Durchmesser zu erzeugen, ist es wichtig, Tenside zu verwenden, die kleine Mizellen<sup>3</sup> bilden. Solche Tenside haben hydrophile Kopfgruppen mit relativ großem Flächenbedarf. Ein dimensionsloser Packungs-Parameter wird mit folgender Formel definiert:

$$P = \frac{V}{a \cdot l}, \quad (6.1)$$

---

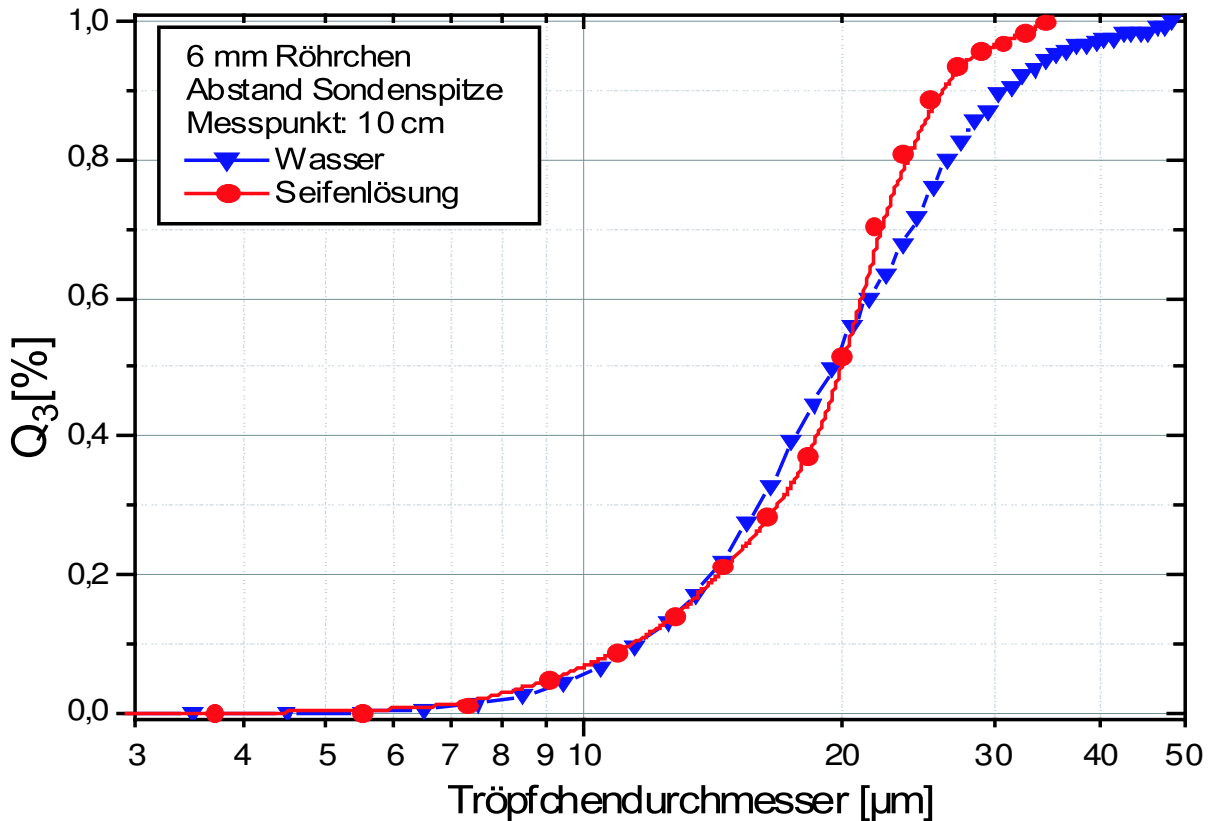
<sup>2</sup>niedermolekulare Verbindungen, deren Moleküle einen hydrophilen (ionisch, nicht-ionisch) und einen hydrophoben (Kohlenwasserstoffrest, z. T. fluoriert; Silicongruppen) Teil enthalten und hierdurch insbesondere in Wasser grenzflächenaktiv sind

<sup>3</sup>kolloidales Molekülaggregat von fadenförmigen, parallel ausgerichteten und durch van-der-Waals Kräfte oder Nebervalenzkräfte zusammengehaltenen Einzelmolekülen



**Abbildung 6.29:** Mittels Lichtspurmethode (siehe Kapitel 3.3) aufgenommene Größen- und Geschwindigkeitsverteilungen im Hochdruckfreistrahls bei Variation des Flüssigkeitsvordrucks (Kapillarlänge: 7 mm, Durchmesser: 45  $\mu\text{m}$ ).

wobei  $V$  das Mizellvolumen,  $a$  die Fläche der Kopfgruppe und  $l$  der Länge des Alkylrestes sind. Um kleine Mizellen zu bilden, sollte der Parameter  $P < 1/3$  sein. Die Tensidkombination von beispielsweise handelsüblichem Haushaltsspülmittel hat einen deutlich größeren Packungs-Parameter und ist daher für den Einsatz in der Hochdruckverneblung ungeeignet. Ein nichtionisches Tensid wie das im folgenden verwendete Alkylpolyglucosid<sup>4</sup> hat einen ausreichend kleinen Packungs-Parameter.

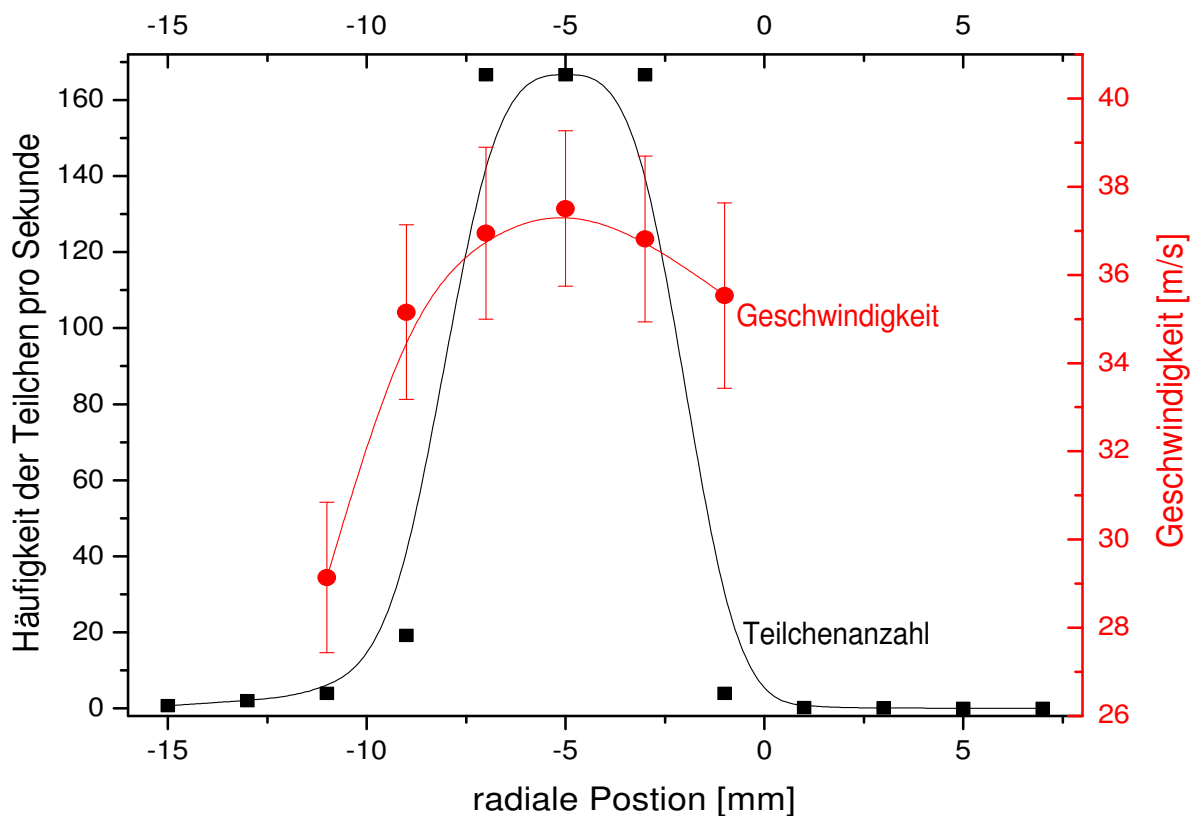


**Abbildung 6.30:** Messung der Größenverteilung von Tröpfchen im Hochdruckfreistrahle bei Zugabe von Tensiden (Kapillarlänge: 6 mm, Durchmesser: 45 µm).

In Abbildung 6.30 ist der Einfluß der Tenside auf die Tröpfchengröße aufgetragen. Vor allem die Entstehung von größeren Tröpfchen kann durch Tensidzugabe verringert werden, wobei der mittlere Tropfendurchmesser nahezu gleich bleibt. Der Verlauf der Teilchengrößenverteilung wird unterhalb eines Tröpfchendurchmessers von 20 µm nicht geändert, das heißt die kleineren im Spray befindlichen Tropfen können durch den Einsatz des Tensids nicht beeinflusst werden. Der Einsatz von Tensiden ist also nur zur Reduktion des Anteils von großen Tropfen sinnvoll. Da für eine vollständige

<sup>4</sup>Firma Henkel, Düsseldorf

ge Verdampfung aber deutlich kleinere Tröpfchengrößen wünschenswert sind, kann mit den Tensiden die Verdampfung nicht verbessert werden. Bei LDA-Messungen mit Hochdruckinjektion im Plasma (Abbildung 6.31) konnten entlang der Plasmaachse über den gesamten Entladungsbereich Partikel detektiert werden. Der Injektionsstrahl mißt am Fackelfuß ca. 10 mm. Die maximale Geschwindigkeiten der Tröpfchen im Plasma beträgt 37 m/s. Die beim Hochdruckverfahren entstehenden verhältnismäßig hohen Tröpfchengeschwindigkeiten und großen Fördermengen (die bei hoher Förderung auch das Plasma auslöschten können) wirken sich nachteilig gegenüber dem Vorteil aus, daß nun kein kaltes Trägergas mehr nötig ist. Im Gegensatz aber zu den beiden anderen Verfahren zur Flüssigkeitsförderung ist die Förderung hier stabil und gleichmäßig. Verstopfungen oder ähnliches traten nicht auf und das Verfahren wird lediglich durch die Größe des Vorratsgefäßes beschränkt, was damit die Einsatzdauer für einen Lauf festlegt.



**Abbildung 6.31:** Tröpfchen- und Geschwindigkeitsverteilung bei Hochdruckinjektion (HF-Leistung: 15 kW, Prozeßdruck: 500 hPa, Flüssigkeitsdruck: 50 bar, Zentralgas: 5 slm, Mantelgas: 60 slm).

Der Vorteil der Hochdruckinjektion des fehlenden Kaltgaskanals wird, im Vergleich mit den beiden anderen Verfahren zur Einbringung von Flüssigkeiten, durch die hohen Tropfengeschwindigkeiten und die großen Fördermengen wieder aufgehoben. Insbesondere die große Tröpfchengrößenverteilung führt letztlich zu einer unvollständigen bzw. nahezu keiner Verdampfung des eingebrachten Materials.

In Hinblick auf die Verdampfung ist die externe Vernebelung das beste Verfahren. Bei höheren Förderraten wiegen sich die Vor- und Nachteile bei Einbringung mit der Verneblersonde und der Hochdruckverneblung auf, wobei die Hochdruckverneblung das größere Potential besitzt.



# Kapitel 7

## Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird ein neuartiger Prozeß zur Herstellung von Nano-Keramikpulvern im thermischen HF-Plasma, ausgehend von gewöhnlichen Pulvern im  $\mu\text{m}$ -Bereich, mit Hilfe von Lichtstreuung an Partikeln diagnostiziert und die Trajektorien sowie das Verdampfungsverhalten der Partikel numerisch untersucht. Schwerpunkt der Messungen sind Geschwindigkeits- (Verweilzeiten-), Größen- und Anzahlmessung eingebrachter fester oder flüssiger Teilchen. Mit Hilfe von Modellen wird das Plasma und Partikelverhalten beschrieben. Zur Optimierung des Syntheseprozesses werden die Plasmaparameter und die Strömungsgeometrie variiert sowie die Möglichkeiten verschiedener Materialeinbringungsmethoden untersucht.

Die experimentelle Bestimmung der Geschwindigkeiten mittels LDA und Leuchtspurmethode liefert maximale Geschwindigkeiten der eingebrachten Materialien beim Scheibenträger von bis zu 60 m/s und beim Fließbettförderer von maximal 30 m/s. Die Form der Profile der Axialgeschwindigkeiten zeigt bei der Bestimmung mittels LDA ein ähnliches Profil wie die simulierten Verteilungen.

Die Messungen von Partikelzahlen und Größen sowie die Simulation der Verdampfung der Materialien im Plasma zeigen, daß mit der vorgestellten Versuchsanordnung zur Erzeugung von Nano-Pulvern eine vollständige Verdampfung von Zirkoniumpulver (in technischen Maßstäben) nicht möglich ist. Berechnungen des Abdampfvorgangs von der Oberfläche der

Ausgangspulver zeigen, daß bei Einbringung fester Ausgangsstoffe weniger als 0,02% des  $\text{ZrO}_2$ -Pulvers verdampft.

Auf theoretischer und experimenteller Basis werden die Bedingungen für eine vollständige Partikelverdampfung ermittelt, in denen die Verweilzeiten und Temperaturen möglichst hoch sind. Technische Voraussetzungen dafür sind im Fall der Materialzufuhr als Feststoff die Einführung eines kontinuierlich arbeitenden Fließbettförderers und im Fall der Flüssigkeitszufuhr die Erarbeitung gleichmäßiger Transport- und Zerstäubungseinrichtungen. Es zeigt sich, daß die Länge des Plasmas möglichst groß bei möglichst geringen Trägergasmengen sein muß, um eine lange Verweilzeit und damit vollständige Verdampfung zu gewährleisten. Die Erhöhung des Plasma-drucks senkt die Partikelgeschwindigkeiten und verlängert dadurch ebenfalls die Verweildauer im Plasma. Weiterhin muß die Plasmatemperatur hoch sein, was mit Leistungserhöhung bewirkt wird, und die Wärmeleitfähigkeit groß, was durch eine Erhöhung der Leistung und durch Zugabe von Molekülgasen wie Wasserstoff realisiert werden kann.

Entscheidend ist letztlich auch die Verwendung von Materialien, bei der die Ausgangspartikelgröße bereits im sub- $\mu\text{m}$ -Bereich liegt, was mit festen Ausgangsstoffen technisch kaum noch zu realisieren ist. Daher kommen hierfür nur noch gelöste Ausgangsstoffe in Frage. Die beste Einbringungsmethode fester Partikel ins Plasma ist die Fließbettförderung. Für die flüssige Injektion hat sich die Verwendung eines externen Verneblers als vorteilhaft herausgestellt. Mit diesem kann eine vollständige Verdampfung erzielt werden, was jedoch nur zu analytischen Zwecken eine ernsthafte Anwendung hat, da diese Fördermethode für einen industriellen Einsatz und eine sinnvolle Produktion zu geringe Förderraten besitzt. Als alternative Einbringungsmöglichkeit kann die Flüssigkeits-Hochdruckinjektion mit höheren Durchflußraten betrieben werden, mit der allerdings keine vollständige Verdampfung erzielt werden kann. Zur Erzeugung kleiner Tröpfchengrößen sind bei diesem Verfahren hohe Flüssigkeitsdrücke erforderlich, die zu großen Fördermengen führen, bei geringeren Drücken hingegen steigt der Durchmesser der Tropfen und verhindert somit eine ausreichende Verdampfungsrate.

# Literaturverzeichnis

- [Aden51] A. L. ADEN: *Electromagnetic Scattering from Spheres with Sizes Comparable to the Wavelength*, Journal of Applied Physics, Vol. **22**, No. 5, 601-605, (1951)
- [Auri98a] V. AURICH, E. MÜHLHAUS, S. GRUNDMANN: *Kantenerhaltende Glättung von Volumendaten bei sehr geringem Signal-Rausch-Verhältnis. 2. Aachener Workshop über Bildverarbeitung in der Medizin*, (1998)
- [Auri98b] V. AURICH, G. WINKLER, K. HAHN: *A Brief Survey of Recent Edge-Preserving Smoothers*. Proc. 5th German-Russian Workshop on Pattern Recognition and Image Understanding, (1998)
- [Auri99] V. AURICH, G. WINKLER, K. HAHN, A. MARTIN, K. RODENACKER: *Noise Reduction in Images: Some Recent Edge-Preserving Methods*. Pattern Recognition and Image Analysis, Vol. 9, No. 4, 749-766, (1999)
- [Berg90] L. BERGMANN, C. SCHÄFER: *Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 1: Mechanik, Akustik, Wärme*, de Gruyter, Berlin, 1990
- [Berg92] W. RAITH: *Bergmann-Schäfer: Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 5: Vielteilchen-Systeme*, de Gruyter, Berlin, 1992
- [Blum25] H. BLUMER: *Strahlungsdiagramme kleiner dielektrischer Kugeln*, Zeitschrift für Physik, **32**, 119-134, (1925)
- [Blut96] A. S. BLUTKE, J. S. VAVRUSKA, J. F. SERINO: *Proceedings of the International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management*, Spectrum vol. 1, p. 775-80, (1996)

- [BMBF02] P. BUCHNER, H. SCHUBERT, T. TONCIAN, M. WEISS, J. UHLENBUSCH: *Diagnose und Modellierung einer thermischen HF-Plasmaquelle im Verbund: Neuartige HF-angeregte Plasmaquellen für Atmosphärendruck*, Förderkennzeichen: 13N7408/3, Abschlußbericht, Düsseldorf, 2002
- [Bohr83] G. F. BOHREN, D. HUFFMAN: *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, Wiley, New York, 1983
- [Born99] M. BORN, E. WOLF: *Principles of Optics*, University Press, Cambridge, 7th ed., 1999
- [Boul78] M. I. BOULOS: *Heating of Powders in the Fire Ball of an Induction Plasma*, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. PS-6, **2**, 93, (1978)
- [Boul85] M. I. BOULOS: *The inductively coupled R.F. (radio frequency) plasma*, Pure & Appl. Chem., **57**, 1321, (1985)
- [Boul92] M. I. BOULOS: *Thermal Spray Technol.*, **1**, 33, 1992
- [Boul94] M. I. BOULOS, P. FAUCHAIS, E. PFENDER: *Thermal Plasmas, Fundamentals and Applications*, Vol. 1, Plenum, New York, 1994
- [Buch98] P. BUCHNER: *Erzeugung und Charakterisierung von ultrafeinen Cu/SiC und ZrO<sub>2</sub>-Pulvern im thermischen Hochfrequenzplasma*, Dissertation, Düsseldorf, 1998
- [Buch01] P. BUCHNER, H. SCHUBERT, J. UHLENBUSCH, M. WEISS: *Evaporation of Zirconia Powders in a Thermal Radio-Frequency Plasma*, J. Therm. Spray Tech., Vol. 10, **4**, p. 666-672, (2001)
- [CFD00] CFDRC: CFD-ACE<sup>TM</sup> Version 6.2.21, ©CFD Research Corporation, Huntsville, Alabama, 2000
- [Chen83] X. CHEN, E. PFENDER: *Effect of the Knudsen Number on Heat Transfer to a Particle Immersed into a Thermal Plasma*, Plasma Chem. and Plasma Process., Vol. **3**, No. 1, 97-113, (1983)
- [Chiu92] C.-P. CHIU: *Particle nucleation and growth in a plasma synthesis reactor*, Ph.D. thesis, University of Minnesota, Minneapolis, 1992

- [Cho96] H. J. CHO, C. K. HWANGBO: *Optical inhomogeneity and microstructure of ZrO<sub>2</sub> thin films prepared by ion-assisted deposition*, App. Optics, Vol. **35**, No. 28, 5545-5552, (1996)
- [Dave69] J. V. DAVE: *Scattering of Electromagnetic Radiation by a Large, Absorbing Sphere*, IBM Journal of Research and Development **13**, 302-313, (1969)
- [Devi65] F. M. DEVIENNE: *Low Density Heat Transfer*, Advances in Heat Transfer, Vol. **2**, 271-353, (1965)
- [Ecke74] H. U. ECKERT: *The Induction Arc: A State-of-the-Art Review*, High Temperature Science **6**, 99-134, (1974)
- [Ferf95] H. FERFERS: *Experimente und numerische Simulation zum Aufschmelzen und Verdampfen von Metallpartikeln im induktiv gekoppelten Argonplasma*, Diplomarbeit, Düsseldorf, 1995
- [Greg95] S. J. GREGG, K. S. W. SING: *Adsorption, Surface Area and Porosity*, 2. Aufl. 1982, 2. Nachdruck, London, 1995
- [Hech94] E. HECHT: *Optik*, Addison-Wesley, Dortmund, 3. Nachdruck, 1994
- [Heue83] M. HEUER: *Verfahren zur Berechnung der Partikelgrößenverteilung aus Beugungsspektren*, Vortrag bei der 3. Fachtagung Granulometrie, Dresden, 1983
- [Hofs78] D. HOFSAESS: *Emission continua of rare gas plasmas*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **19**, 339-352, (1978)
- [Holl83] C. M. HOLLABAUGH, D. E. HULL, L. R. NEWKIRK, J. J. PETROVIC: J. Mater. Science, **18**, 3190, (1983)
- [Info01] *Thermische Induktionsplasmen für die Schichtabscheidung im Atmosphärennahen Druckbereich*, INFO PHYS TECH, Nr. **35**, VDI-Technologiezentrum, Düsseldorf, 2001
- [Ishi91] T. ISHIGAKI, J. JUREWICZ, M. I. BOULOS: Proc. 10th Int. Symp. Plasma Chemistry, vol. **1**, paper no. 1.4-18, Bochum, 1991

- [Ishi97] T. ISHIGAKI, X. FAN, T. SAKUTA, T. BANJO, Y. SHIBUYA: *Generation of pulse-modulated induction thermal plasma at atmospheric pressure*, Appl. Phys. Lett. **71**, 3787-3789, (1997)
- [Jack83] J. D. JACKSON: *Klassische Elektrodynamik*, Walter de Gruyter & Co., Berlin, 1983
- [Jian95] X. L. JIANG, F. GITZHOFFER, M. I. BOULOS, R. TIWARI: J. Mater. Sci. **30**, 2325-2329, (1995)
- [Klei88] M. V. KLEIN, T. E. FURTAK: *Optik*, Springer, Berlin, 1988
- [Kief88] W. KIEFER: *Raman-Mie Scattering*, Croat. Chim. Acta, **61**, 474, (1988)
- [Kief97] W. KIEFER, M. LENKERS, M. TRUNK, I. HARTMANN, E. URLAUB, J. MUSICK: *Raman-Mie Scattering from single Laser trapped microdroplets*, J. of Mol. Struct., **408/409**, 113-120, (1997)
- [Kort50] H. LANDOLT, R. BOERNSTEIN: *Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik*, 6. Aufl., Springer, Berlin, 1950
- [Land93] C. LANDRON, PH. ODIER, D. BAZIN: *In situ XAS of Aerosol Systems: Application to the Structural Study of a Zirconia Precursor*, Europhysics Letters **21** (8), 859-864, (1993)
- [Lee96] Y. K. LEE, J. W. PARK: *Optical properties and stresses of RF magnetron sputtered yttria-stabilized zirconia thin films*, Journal of Materials Science Letters **15**, 1513-1516, (1996)
- [Lefe89] A. H. LEFEBVRE: *Atomization and Sprays*, Hemisphere Publishing, New York, 1989
- [LOT95] L.O.T.-ORIEL: Technische Daten zu einem Bandpaßfilter, L.O.T.-Oriel GmbH, Darmstadt, 1995
- [Mich96] B. MICHELT: *Abscheidung hochtemperatursupraleitender Schichten aus Yttrium-Barium-Kupferoxid mittels Plasma-kurzzeitverdampfung*, Dissertation, Ruhr-Universität, Bochum, 1996

- [Mie08] G. MIE: *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*, Annalen der Physik 4. Folge, **25**, 377-445, (1908)
- [Mont87] A. MONTASER, G. W. GOLIGHTLY: *Inductively Coupled Plasmas in Analytical Atomic Spectrometry*, VCH, Weinheim, 1987
- [NIST03] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY: [http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main\\_asd](http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main_asd), Gaithersburg, 2003
- [Okad89] T. OKADA, H. HAMATANI, T. YOSHIDA: Journal American Ceramic Society **72**, 2111-2116, (1989)
- [Owan93] T. G. OWANO, C. H. KRUGER: *Parametric Study of Atmospheric-Pressure Diamond Synthesis with an Inductively Coupled Plasma Torch*, Plasma Chem. and Plasma Proc. **13**, 433-446, (1993)
- [Prou85] P. PROULX, J. MOSTAGHIMI, M. I. BOULOS: *Plasma-particle interaction effects in induction plasma modeling under dense loading conditions*, Journal of Heat and Mass Transfer, **28**, 1327, (1985)
- [Ques00] QUESTAR: *QM 100 Long-Distance Microscope (30003)*, Datenblatt, Questar Corporation, New Hope, USA, 2000
- [Rama99] K. N. RAMAKRISHNAN: *Powder particle size relationship in microwave synthesised ceramic powders*, Materials Science and Engineering , **A259**, 120-125, (1999)
- [Rao95] N. RAO, S. GIRSHICK, J. HEBERLEIN ET AL: *Nanoparticle Formation Using a Plasma Expansion Process*, Plasma Chem. and Plasma Proc., **15**, 581-606, (1995)
- [Ruck90] B. RUCK: *Lasermethoden in der Strömungstechnik*, AT-Fachverlag, Stuttgart, 1990
- [Schl82] H. SCHLICHTING: *Grenzschicht-Theorie*, G. Braun, Karlsruhe, 1982

- [Schu97] H. SCHUBERT: *Emissionsspektroskopische Messungen an einem induktiv gekoppelten Ar-Plasma zur Synthese ultrafeiner Partikel*, Diplomarbeit, Düsseldorf, 1997
- [Schu03] H. SCHUBERT: *Spektroskopische Untersuchung und Modellierung einer zur Erzeugung von ZrO<sub>2</sub>-Nanopartikeln verwendeten HF-Entladung*, Dissertation, Düsseldorf, 2003 (in Vorbereitung)
- [Sieg94] R. W. SIEGEL: *Nanophase Materials*, in: Encyclopedia of Applied Physics, **11**, 173, (1994)
- [Sieg97] R. W. SIEGEL: Spektrum der Wissenschaft, **3**, 62, (1997)
- [Spri95] G. S. SPRINGER: *Heat Transfer in Rarefied Gases*, Advances in Heat Transfer, Vol. **7**, 163, (1995)
- [Spec73] SPECTRA-PHYSICS: *Model 164 Ion Laser with Model 265 Exciter*, Instruction Manual, 1973, © Spectra-Physics
- [Step93] R. L. STEPHENS, J. S. MCFEATERS, B. J. WELCH: Proc. ISPC 11, 65, (1993)
- [Symp99] SYMPATEC GMBH: *Datenblätter und Produktbeschreibung: Helos*, System-Partikel-Technik, Clausthal-Zellerfeld, 1999
- [Take88] S. TAKEUCHI, T. OKADA, T. YOSHIDA, K. AKASHI: J. Jpn. Inst. Metals **52**, 711-718, (1988)
- [Weis98] M. WEISS: *Experimentelle Untersuchung des Verdampfungsverhaltens von Partikeln im thermischen RF-Plasma mittels Lichtstreuung*, Diplomarbeit, Heinrich-Heine Universität, Düsseldorf, 1998
- [Will98] K. WILLÉE: *Erzeugung ultrafeiner Partikel im thermischen RF-Plasma durch Suspensions-Plasma-Kurzzeitverdampfung*, Diplomarbeit, Heinrich-Heine Universität, Düsseldorf, 1998
- [Yeh64] Y. YEH, H. Z. CUMMINS: *Localized Fluid Flow Measurements with an He-Ne-Laser Spectrometer*, Applied Physics Letters, Vol. **4**, No. 10, 176-178, (1964)
- [Yosh77] T. YOSHIDA, K. AKASHI: *Particle Heating in a Radio Frequency Plasma Torch*, Journal of Applied Physics, **48**, 2252, (1977)



## Danksagung

Hiermit möchte ich meinen herzlichen Dank an alle aussprechen, die mich bei meiner Arbeit und während meines Studiums unterstützt haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. J. Uhlenbusch für die Anregung zu dieser Arbeit, die kontinuierliche und intensive Betreuung, sowie für die kritische Durchsicht des Manuskripts und die Übernahme des Referats.

Herrn Prof. Dr. G. Pretzler möchte ich für die gründliche, kritische Durchsicht des Manuskripts und die Übernahme des Korreferats danken.

Bei Herrn Dr. P. Buchner bedanke ich mich für die sehr gute und intensive Zusammenarbeit, der mich vor allem für die experimentelle Arbeit am ICP-Experiment zur Produktion von Nanopartikeln begeistern konnte und mit seinem Engagement die Arbeitsgruppe bereicherte.

Meinem Mitstreiter Herrn Dipl.-Phys. H. Schubert bin ich für die sehr gute gemeinsame Zusammenarbeit beim Betrieb des Plasmaexperimentes und viele frohe Stunden dankbar.

Unserem zweiten Weggefährten am ICP-Experiment Herrn cand. Phys. Toma Toncian bin ich für die Zusammenarbeit bei den Experimenten und insbesondere auch für die freundliche Unterstützung bei der Programmierung dankbar.

Bei Herrn Dr. D. Hemmers bedanke ich mich für die kritische Durchsicht von Teilen des Manuskripts und die stete Diskussionsbereitschaft bei Fragestellungen.

Den Werkstattangehörigen des Instituts für Laser- und Plasmaphysik sowie der Zentralwerkstatt Physik unter der Leitung der Herren Rosemann und Kiehl ist vielmals für die Lösung der umfangreichen technischen Fragestellungen zu danken.

Allen Mitarbeitern des Instituts für Laser- und Plasmaphysik danke ich für die gute Zusammenarbeit, sowie die stete Diskussionsbereitschaft.

Mein besonderer Dank gilt hierbei Herrn Dr. J.H. Schäfer für die Lösung der vielfältigsten Problemstellungen.

Von ganzem Herzen danke ich meinen Eltern und Großeltern, die mir durch ihre großzügige Unterstützung das Studium und meine Promotion ermöglicht haben.

## Lebenslauf

- Geboren am 26. Juni 1972 in Potsdam-Babelsberg
- 09/79 - 08/87: Oberschule in Neuenhagen (b. Berlin)
- 09/87 - 07/91: math.-nat.-techn. Spezialschule in Frankfurt (Oder)
  - allgemeine Hochschulreife (Abitur), Durchschnittsnote: 1,7
  - mathematisch-technisch-naturwissenschaftlicher Spezialschulabschluß (Gesamtnote „gut“)
- 08/91 - 08/92: Grundwehrdienst bei der Bundeswehr als Sanitäter
- 09/92 - 01/95: Physikstudium an der TU-Clausthal
  - Chemie als Wahlfach
  - 01. November 1994: Vordiplom (Gesamtnote „gut“)
- 02/95 - 02/96: Studium der Physik an der University of Cape Town in Südafrika
  - Tutortätigkeiten: Betreuung von Praktika und Übungen
  - Bearbeitung einer experimentellen Projektarbeit mit dem Thema „Investigation of the Second Harmonic Generation in KDP“
  - 12. Dezember 1995: Bachelor of Science (Honours) (Note „First Class“(1))
- 04/96 - 03/99: Studium der Physik an der Heinrich-Heine-Universität in Düsseldorf
  - 17. März 1999: Diplomprüfung in Physik (Gesamtnote „gut“)
  - Thema der Diplomarbeit: „Experimentelle Untersuchung des Verdampfungsverhaltens von Partikeln im thermischen RF-Plasma mittels Lichtstreuung“ am Institut für Laser- und Plasmaphysik
- Seit 03/99: wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Laser- und Plasmaphysik an der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf