

Abschlussbericht zum Vorhaben

**„Visualisierung der Interaktion von Partikeln mit Fluid und Phasengrenze
während der gerichteten Erstarrung unter Schwerelosigkeit“
(VIPer)**

FKZ: 50 WM 2045

Laufzeit: 1.10.2020 - 30.9.2023

Projektleitung: Dr. Tina Sorgenfrei

Kristallographie
Albert-Ludwigs-Universität
Hermann-Herder-Str. 5
79104 Freiburg
Tel.: 0761 / 203 6439
Fax: 0761 / 203 6434

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMW, jetzt BMWK) und des Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR) unter dem Förderkennzeichen 50 WM 2045 gefördert.

Dr. Tina Sorgenfrei
(Projektleitung)

Universität Freiburg
(Rechtsverb. Unterschrift)

Inhalt

Abkürzungsverzeichnis	3
1. Kurzdarstellung des Forschungsvorhabens VIPer	4
1.1 Aufgabenstellung	4
1.2 Projektvoraussetzungen	5
1.3 Planung und Ablauf der Vorhabens	5
1.4 Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Vorhabenbeginn	6
1.5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen	8
2. Eingehende Darstellung des Forschungsvorhabens VIPer	9
2.1 Wissenschaftlich-technische Ergebnisse	9
2.1.1 Grundlagen	9
2.1.2 Vorversuche zum Schlieren-Optik Aufbau für die Parabelflugkampagne	14
2.1.3 Arbeiten zur Parabelflugkampagne	26
2.1.4 Vorbereitung, Durchführung und Auswertung des Flugexperiments auf TEXUS 58	36
2.2 Wichtige Positionen des zahlenmäßigen Nachweises	64
2.3 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit	64
2.4 Verwertung der Ergebnisse.....	65
2.5 Fortschritte an anderer Stelle	65
2.6 Veröffentlichungen	65
3. Erfolgskontrollbericht	67
4. Arbeiten, die zu keiner Lösung geführt haben.....	68
5. Präsentationsmöglichkeiten für mögliche Nutzer.....	68
6. Einhaltung der Ausgaben- und Zeitplanung	68
Referenzen.....	69

Abkürzungsverzeichnis

μg	Mikrogravitation
μm	Mikrometer
1g	Erdbeschleunigung
FM	Flugmodul (Airbus D&S Experimentmodul TEM 06-23)
IISB	Fraunhofer Institut für Integrierte Schaltungen und Bauelemente
KIF	Kristallographie der Universität Freiburg
PG	Phasengrenze
PPW	Partikel-Phasengrenz-Wechselwirkung
QG	Quarzglas
Si	Silizium
InSituKris	Verbund-Projekt „In-situ Beobachtung von Fremdphasenpartikeln in Fluiden und ihrer Interaktion mit der Kristallfront“ gefördert unter FKZ 50WM1756
T_M	Schmelztemperatur
v_{Gr}	Wachstumsgeschwindigkeit / Verschiebegeschwindigkeit der fest-flüssig PG
v_c	kritische Wachstumsgeschwindigkeit

1. Kurzdarstellung des Forschungsvorhabens VIPer

1.1 Aufgabenstellung

Im Rahmen dieses Vorhaben wurden die Bewegungsprofile von festen Fremdphasen in Form von Einzelpartikeln unterschiedlicher Größe in einem optisch transparenten Fluid und deren Interaktion mit kontrolliert bewegten fest-flüssig-Phasengrenzen untersucht.

In der Kristallzüchtung, besonders im industriellen Maßstab, ist der Einbau von Fremdphasenpartikeln in wachsende Kristalle ein aktuelles Problem. Diese Partikel führen meist zu einer verminderten Ausbeute aufgrund von Materialverlust während der Prozessierung von Bauelementen oder zu geringeren Effizienzen der Bauelemente aufgrund schlechterer Kristall- bzw. Oberflächenqualität und lokal veränderter elektrischer Eigenschaften (z.B. Kurzschlüsse).

Das Projekt ist ein Verbundprojekt mit unserem Kooperationspartner Fraunhofer IISB in Erlangen und gliedert sich in 2 Teilprojekte, die sich indirekt thematisch auf das als herausragend evaluierte ESA-Projekt „Gravitational effects on heat and mass transport phenomena in directional solidification of upgraded metallurgical silicon for photovoltaic applications (SiSSI, AO-2009-1051)“ beziehen:

Im Teilprojekt 1 wurden reale Systeme, die die Problematik des Partikeleinbaus aufweisen, mit Hilfe transparenter Modellsysteme dargestellt und in-situ untersucht. Die direkte Beobachtbarkeit der Partikel in der Schmelze/fluiden Phase und an der Phasengrenze eröffnet zahlreiche Möglichkeiten. So können der Einfluss von Schwereseigerung (durch Variation des Verhältnisses von Dichte Partikel zu Dichte des Fluids) durch den Einsatz verschiedener Partikelmaterien, von der Form der Partikel, ihrer Bewegung in den Konvektionsrollen oder ohne Konvektion (unter diffusiven Bedingungen) in Wechselwirkung mit der statischen oder mobilen Phasengrenze genau untersucht werden. Im Rahmen des Vorgängervorhabens InSituKris wurde mit dem Einsatz verschiedener transparenter Materialien ein weiterer Bereich von Materialparametern angewandter Materialien dargestellt, die besonders für das zweite Teilprojekt (Simulationsrechnungen) von Interesse sind. Die Erkenntnisse aus diesem Vorhaben wurden direkt auf dieses Vorhaben transferiert um eine direkte Vergleichbarkeit mit den Forschungsergebnissen aus InSituKris sicherzustellen. Die Variation von Partikelart, -form und -größe lieferte weiter Information über das tatsächliche Verhalten dieser Fremdphasen in verschiedenen Milieus. Auch hier wurden die aus InSituKris gewonnenen Erkenntnisse direkt auf den Versuchsaufbau für VIPer übertragen. Die experimentell gewonnen Daten wurden dann in mathematische Modelle eingepflegt um die Vorhersage des Verhaltens weiter optimieren zu können. Zu Beginn solcher Untersuchungen müssen, da die Randbedingungen dieser mathematischen Modelle so einfach wie möglich gehalten werden müssen (um z.B. möglichst wenige externe und teilweise unbekannte Einflussparameter berücksichtigen zu müssen), die experimentellen Bedingungen weitestgehend an die der (doch stark vereinfachten) theoretischen Modelle angepasst werden. Alle Einflussparameter müssen für das Verständnis des gesamten Systems separiert und quantifiziert werden können. Aus diesem Grund waren und sind Experimente unter Mikrogravitation unumgänglich, da nur dort die starke Auftriebskonvektion im Fluid und die Schwereseigerung der Fremdphasen umgangen werden kann. Eine spätere Erweiterung der Modelle um bekannte Einflussgrößen, wie z.B. die Gravitation, ist nach erfolgreicher Übereinstimmung von Experiment und Simulation dann möglich. Eine geeignete Plattform stellen - für die hier beschriebene Fragestellung - experimentelle Versuche auf TEXUS dar. Wie schon das InSituKris-Experiment wurde für den μ g-Versuch das Modul TEM 06-23 von Airbus genutzt. Bis auf kleinere Veränderungen an der Experimentzelle (der Durchmesser der Zuleitung zur Injektion der Partikel wurde vergrößert) entspricht der Experimentaufbau dem des InSituKris-

Experiments, was die Vergleichbarkeit der gewonnenen Erkenntnisse ebenso sicherstellt. Die entsprechenden Bodenversuche und das verwendete Flugmodul werden in Kapitel 2 genauer erläutert.

Das oben bereits erwähnte Teilprojekt 2 widmet sich der numerischen Simulation & Anpassung theoretischer Modelle und wurde von unserem Verbundpartner (J. Friedrich, Fraunhofer IISB) bearbeitet.

Bereits im Rahmen des Vorgängervorhabens InSituKris wurde mithilfe von material- bzw. systemspezifischen fluidmechanischen Kennzahlen die Übertragbarkeit der eingesetzten Modellmaterialien auf andere Systeme wie z.B. Silizium untersucht und bestätigt. Ein wichtiger Punkt der Simulationen stellte die Abbildung der thermischen Felder im verwendeten Versuchsaufbau und die Darstellung der Phasengrenzform im Versuchsverlauf bei Anlegen verschiedener Versuchsparameter (Temperaturen und vertikaler Verschiebegeschwindigkeiten der PG) dar. Die Validierung der Modelle erfolgte durch den kontinuierlichen Abgleich mit experimentellen Daten. Die Ergebnisse dienen zum einen der Modellbildung zur Wechselwirkung von Partikel und Phasengrenze und zum anderen der Planung und Prozessführung der. Diese Untersuchungen anhand der gewonnen experimentellen Erkenntnisse wurden überprüft und erweitert, um das Verständnis der Wechselwirkung von Partikel und Phasengrenze zu vertiefen.

Die genaue Fragestellung, die Methodik und die Ziele dieses zweiten Teilprojektes wurden im VIPer-Teilabschlussbericht des Fraunhofer IISB im Detail erläutert.

1.2 Projektvoraussetzungen

Die Arbeiten waren Teil des bei der ESA unter dem Titel „Gravitational effects on heat and mass transport phenomena in directional solidification of upgraded metallurgical silicon for photovoltaic applications (SiSSi, AO-2009-1051)“ laufenden Projektes. Bei diesem Vorhaben handelt es sich um ein Verbundvorhaben der beteiligten Institutionen Kristallographie, Universität Freiburg (KIF) und dem Fraunhofer Institut für Integrierte Schaltungen und Bauelemente in Erlangen. Dieses Verbundvorhaben ist in 2 Teilprojekte untergliedert. Die Versuchsplanung, -durchführung und -auswertung liegt im Aufgabenbereich des KIF, während die Erstellung und Berechnung theoretischer Modelle im Verantwortungsbereich des IISB liegt.

Erkenntnisse aus den vorangegangenen ParSiWal- Vorhaben, die diese wissenschaftliche Fragestellung ursprünglich aufgegriffen und in nicht-transparenten Systemen systematisch untersucht haben, und den dazugehörigen Flugexperimenten auf den TEXUS-Missionen 51, 53 und 55 sind -genauso wie die Erkenntnisse aus dem InSituKris-Vorhaben- in die Projekt- und Versuchsplanung des VIPer-Vorhabens eingeflossen.

1.3 Planung und Ablauf des Vorhabens

Das Vorhaben war direkt an ein Flugexperiment auf einer ballistischen Rakete in einer ESA-Mission geknüpft, die im Berichtszeitraum erfolgreich durchgeführt wurde. Im Rahmen einer ESA-Ausschreibung wurde das VIPer-Vorhaben als „outstanding“ bewertet und wurde als „prime candidate“ für die erste TEXUS-Rakete der Ausschreibung geplant. Eine detaillierte Beschreibung der

Flug- und der Bodenreferenz-Experimente und ihrer Auswertung folgt ausführlich in Kapitel 2 dieses Berichts.

Im Rahmen des Teilprojektes 2 wurden Simulationsarbeiten am Fraunhofer IISB durchgeführt. Für eine erfolgreiche Zusammenarbeit standen beide Verbundpartner in ständigem, wissenschaftlichem Austausch. Die Ergebnisse aus diesem Teilprojekt sind detailliert im Abschlussbericht des Fraunhofer IISB zu finden.

Die ursprüngliche Zeit- und Vorhabenplanung konnte weitestgehend eingehalten werden, Verzögerungen im Ablauf waren bedingt durch die erst spät im Vorhaben (April 2023) realisierte TEXUS-Mission. Folgende Abbildung 1.1. zeigt den ursprünglichen, gemeinsamen Meilensteinplan der Verbundpartner in diesem Vorhaben.

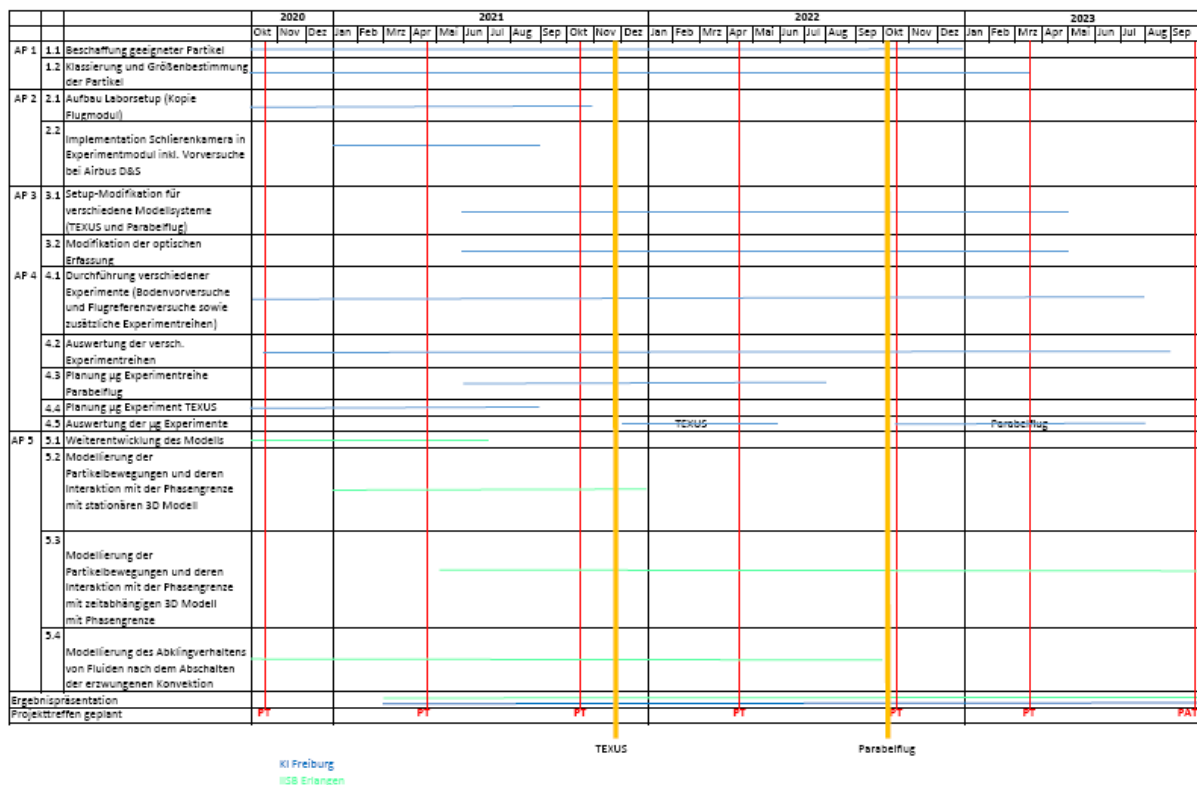


Abb. 1.1: Meilensteinplan des Verbundprojektes InSituKris wie er zu Beginn des Vorhabens festgelegt wurde.

1.4 Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Vorhabensbeginn

Der ungewollte Einbau von Fremdphasenpartikeln ist besonders im Bereich der Kristallisation von PV-Silizium ein Problem. Hier stören insbesondere der Einbau von Siliziumkarbid- (SiC) und Siliziumnitrid- (Si₃N₄) Partikeln die wirtschaftliche Produktion von preisgünstigen, effizienten Solarzellen. Die Fremdphasen, die andere physikalische Eigenschaften (wie z.B. Härte, elektrische Leitfähigkeit) als das umgebende Material aufweisen, führen zur Verringerung der Solarzelleneffizienz und zu verminderter Materialausbeute. Zudem führen die mehrere Mikrometer (µm) großen Partikeln zu enormen Störungen (Defekten) des atomaren Aufbaus der kristallinen Strukturen und damit zusätzlich zu verminderten Effizienzen der Bauelemente und des Kristallzüchtungsprozesses selbst. Diese Limitierungen motivierten zu den Untersuchungen des Einbauverhaltens von Partikeln in Silizium (Si)

im Rahmen der von DLR/BMWi geförderten ParSiWal-Projekte. Durch die terrestrischen Untersuchungen und durch die Experimente unter Schwerelosigkeit während der ballistischen Raketenmissionen TEXUS 51, 53 und 55 konnte das theoretische Verständnis zum Partikeleinbau und zur sog. kritischen Einfanggeschwindigkeit von SiC- und Si₃N₄-Partikeln bei der gerichteten Erstarrung von multikristallinen Siliziumblöcken für die Photovoltaik verbessert werden. Es zeigte sich, dass der konvektive Transport in der Schmelze direkt an der Kristallisationsfront und damit die Erhöhung der sog. Lift-Force (F_L), ausschlaggebend ist, um den Partikeleinfang zu vermeiden. Daraus konnte geschlossen und auch in Kooperation mit Industriepartner gezeigt werden, dass der Einsatz rotierender elektromagnetischer Felder zur Verstärkung der Rührwirkung in der Schmelze einen positiven Effekt auf das Schiebehavior der Partikel hat.

Jedoch hat sich im Rahmen der ParSiWal-Projekte auch gezeigt, dass die theoretische Beschreibung und Interpretation der Ergebnisse durch eine reine ex-situ Analyse der erstarrten Proben schwierig ist, auch vor dem Hintergrund, dass eine Clusterbildung der Partikel bei der Verwendung von Si/SiC oder Si/Si₃N₄ als Materialsystem nicht vollständig vermeidbar ist. Deshalb war es das Ziel im Rahmen des vorliegenden InSituKris-Projektes, das Verhalten des Einfangens und Einbaus von Partikeln mithilfe transparenter Modellsysteme direkt und in-situ zu untersuchen. Die direkte Beobachtbarkeit der Partikel in der Schmelze und an der Phasengrenze eröffnet zahlreiche Möglichkeiten. So können der Einfluss von Schwereseigerung (durch Variation des Verhältnisses von Dichte der Partikel zu Dichte des Fluids) durch den Einsatz verschiedener Partikel- und Fluidmaterialien, von der Form der Partikel, ihrer Bewegung in Wechselwirkung mit einer statischen oder sich bewegenden fest-flüssig Phasengrenze genauer untersucht werden. Außerdem kann durch den Einsatz verschiedener transparenter Systeme ein weiter Bereich von Eigenschaften für technisch interessante Materialien erschlossen werden. Darauf aufbauend wurde das InSituKris-Experiment auf TEXUS 56 im April 2023 durchgeführt. Hier kam bereits ein Modellsetup zum Einsatz, der das theoretische Modellsystem bestmöglich abbildet. Hierzu wurde eine transparente Schmelze eingesetzt, die ebenso transparent kristallisiert, aber dennoch eine optisch sichtbare fest-flüssig-Phasengrenze ausbildet. Beim eingesetzten Fluid handelt es sich um reines Wasser (H₂O). Als Partikel wurden verschiedene optisch opake, sphärische Partikel eingesetzt. Damit wird das in der theoretischen Simulation eingesetzte Modellsystem bestmöglich und annähernd komplett zutreffend abgebildet.

Weiter konnte gezeigt werden, dass der Dichteübergang der Substanz im Moment der Kristallisation eine zusätzliche Kraft auf die freischwebenden Partikel ausübt, die in unserem Fall, von der Phasengrenze weg gerichtet ist. Dies ist auf die Volumenzunahme bei der Kristallisation von Wasser zurückzuführen. Diese Dichteanomalie zeigt auch Silizium.

Im Rahmen der Vorgänger-Projekte mit Einsatz von Silizium wurden nur im geringen Umfang Simulationsrechnungen und theoretische Modelle eingesetzt, um die experimentellen Untersuchungen zu unterstützen. Die Möglichkeit, die Partikel während der Erstarrung in-situ beobachten zu können, die sich bereits im Rahmen des InSituKris-Projektes eröffnet hat, ist aufgrund der gut dokumentierten Daten auch die Chance, die Modellbildung weitervoranzubringen. Deshalb wurden in diesem Vorhaben Modelle zur Berechnung der thermischen Felder in der verwendeten Ofenanlage, der Schmelzströmung und des Partikeltransports in der Schmelze entwickelt und zur Unterstützung der Interpretation der experimentellen Ergebnisse eingesetzt.

1.5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Im Rahmen des InSituKris-Vorhabens wurde außer mit dem Verbundpartner des Fraunhofer IISB mit Prof. Jeff Derby von der Universität Minnesota auf dem Gebiet der Simulation der Partikelbewegung und dem Partikeleinfangverhalten zusammengearbeitet, was die Arbeitsgruppe von Prof. Derby zudem zu eigenen Untersuchungen motiviert hat.

2. Eingehende Darstellung des Forschungsvorhabens VIPer

2.1 Wissenschaftlich-technische Ergebnisse

Wie bereits oben skizziert, stellt der Einbau von Fremdphasen in Form von Partikeln oder Agglomeraten während der Kristallzüchtung ein Problem für die spätere technische Anwendung von Einkristallen dar, da dies mit einem Qualitätsverlust der Produkte, die aus diesen Einkristallen hergestellt werden, einhergeht. Ziel des Verbundvorhabens war es deshalb, den Transport von Partikeln und deren Wechselwirkung mit einer sich bewegenden Erstarrungsfront (Einfangen/Schieben) mithilfe eines transparenten Modellsystems in-situ und unter Mikrogravitationsbedingungen zu untersuchen.

Der prinzipielle Aufbau des Versuchs-Setup für sowohl für die Boden- als auch die verschiedenen Flugexperimente wurden für das laufende VIPer-Vorhaben aus dem Vorgängervorhaben InSituKris weitestgehend übernommen. Dies wurde auf Grundlage der bis dato durchgeführten Laborversuche und in Absprache mit der Firma Airbus Defense and Space, die uns eine Spare-Experimentzelle aus dem Modul TEM06-23 zur Verfügung gestellt haben, direkt bei Projektbeginn entschieden. Die Verwendung des identischen Set-ups stellt die Grundlage für die direkte Vergleichbarkeit der gewonnenen Boden-, Parabelflug- und Raketendaten.

In den folgenden Kapiteln werden die Experimente und Analysen der verschiedenen Versuche im Labor für die Vorbereitung der Parabelflugexperimente und die Durchführung derer sowie der Boden- und des Flugexperiments auf TEXUS 58 beschrieben und erläutert. Da die Parabelflugkampagne zeitlich vor der TEXUS 58-Mission stattgefunden hat, werden diese Versuche im Bericht zuerst beschrieben, auch wenn die Abfolge damit nicht ganz der chronologischen Reihenfolge der Projektarbeiten entspricht.

2.1.1 Grundlagen

Eingesetzte Modellschmelze Wasser (H_2O)

Wasser ist die flüssige Phase der anorganischen, polaren Verbindung des H_2O -Moleküls. Es handelt sich um die meist untersuchte chemische Substanz aufgrund seines Vermögens sehr viele Stoffe lösen zu können. Neben seinen ausgesprochen guten Lösungseigenschaften zeigt Wasser weitere Stoffeigenschaften, die es als beste Möglichkeit für den Einsatz als Modellschmelze in unserem Vorhaben qualifizieren. Die hier eingesetzte Schmelze agiert als Modell für Siliziumschmelzen. Die Fragestellung im Vorhaben ist aus der Photovoltaik-Industrie motiviert, wo sich der Einbau von Fremdphasen (im Wesentlichen SiC und Si_3N_4) in blockerstartes Silizium als großes Problem erwiesen hat. Um nun dieses Verhalten abbilden zu können, sollen die eingesetzten, transparenten Modellsubstanzen parametrisch möglichst nah an den Ausgangsstoffen liegen. Vor Allem aufgrund der bei sowohl im Wasser als auch in Silizium auftretenden Dichteanomalie ist Wasser die bestmögliche, transparente Alternative zu Silizium. Die Eignung von Wasser als Modellmaterial wurde bereits im Vorgängervorhaben InSituKris detailliert untersucht und dargestellt, aus diesem Grund wird darauf in diesem Bericht nicht weiter eingegangen.

Die folgende Tabelle 2.1 zeigt eine kurze Übersicht der wichtigsten Materialparameter des H_2O .

Tabelle 2.1: Übersicht ausgewählter Materialparameter von H_2O

Molare Masse	18,02 g/mol	[Ges 24]
Dichte	1,0 g/cm ³ (@ 3,98 °C) 0,92 g/cm ³ (@ 0 °C)	[Ges 24]
Schmelzpunkt	0,0 °C	[Ges 24]
Dampfdruck	6,1 hPa (0 °C)	[Ges 24]

Eingesetzte Partikel

Zur Untersuchung der Fragestellung des Vorhabens wurden basierend auf den Erkenntnissen des Vorgängervorhabens InSituKris erneut Polystyrol-Partikel eingesetzt. Polystyrol (PS) besitzt eine ähnliche Dichte wie das eingesetzte Fluid (H_2O) und zeigt zudem einen sehr guten optischen Kontrast sowohl in der flüssigen Phase des H_2O (Wasser) als auch im Feststoff (Eis). Im Gegensatz zur Fragestellung im InSituKris-Vorhaben war eines der Hauptanliegen des VIPer-Vorhabens die Visualisierung der direkten und unmittelbaren Interaktion zwischen einem Partikel der sich einer mobilen Phasenfront nähert und eben dieser Phasenfront. Aus diesem Grund wurden in diesem Vorhaben wesentlich größere Partikel mit Durchmessern von 300µm und 500µm eingesetzt. In vorangegangenen Versuchen wurde festgestellt, dass Partikel mit einer Größe <30 µm sehr gut geeignet sind, um Strömungsmuster im Schmelzvolumen abzubilden, allerdings sind sie zu klein, um eine Interaktion zwischen Partikel und PG zu beobachten. Mit Hilfe dieser Partikel konnten die Strömungsmuster, die durch Auftriebs- und thermische Marangonikonvektion angetrieben werden, sowohl qualitativ als auch quantitativ untersucht werden. Dabei stellte sich ebenfalls heraus, dass sich direkt oberhalb der PG eine unerwartet dicke Grenzschicht ausbildet, in der keinerlei konvektiver Massentransport stattzufinden scheint (s. Abschlussbericht InSituKris). Auch aus diesem Grund wurden nun Partikel mit einem Durchmesser größer als der Dicke dieser „Diffusionsgrenzschicht“ eingesetzt.

Um zudem den Einfluss verschiedener Oberflächeneigenschaften zu bewerten, wurden neben reinen PS-Partikeln ebenso PS-Partikel mit einer oberflächlichen Metallbeschichtung eingesetzt. Damit sollte - gerade im Hinblick auf die anschließenden Simulationsarbeiten beim Projektpartner - der Einfluss von Parametern wie Wärmeleitfähigkeit, Wärmekapazität und Oberflächenpotentiale auf die Partikel-Phasenfront-Wechselwirkung (PPW) quantifizierbar gemacht werden. Zudem wurden eben jene Eigenschaften auf das im zuvor gelaufenen Vorhaben beobachtete Verhalten der Partikel-Agglomeration hin untersucht. Eine Übersicht der Partikel ist in Tabelle 2.2 zu finden.

Tabelle 2.2: Übersicht und Materialparameter eingesetzter Partikelarten [Mic 17]

Partikel- bezeichnung	Material	Beschichtung	Partikeldurchmesser d_{50} [μm]	Morphologie	Dichte [g/cm^3]
PS 20 (blau)	Polystyrol (C_8H_8) _n	-	20	sphärisch	1,05
PS 55 (blau)	Polystyrol (C_8H_8) _n	-	55	sphärisch	1,05
PS 60 (blau)	Polystyrol (C_8H_8) _n	-	60	sphärisch	1,05
PS 100 (blau)	Polystyrol (C_8H_8) _n	-	100	sphärisch	1,05
PS 300 (blau)	Polystyrol (C_8H_8) _n	-	300	sphärisch	1,05
PS 300 (gold)	Polystyrol (C_8H_8) _n	Au/Ag	500	sphärisch	1,4
PS 500 (blau)	Polystyrol (C_8H_8) _n	-	300	sphärisch	1,05
PS 500 (gold)	Polystyrol (C_8H_8) _n	Au/Ag	500	sphärisch	1,4

Konvektion, Diffusion und Verdrängung

Der Wärme- und Materialtransport in einem Fluid wird immer durch Konvektion und Diffusion bestimmt. Die Diffusion beschreibt die Neigung von Gasen und Flüssigkeiten Konzentrationsdifferenzen von Stoffteilchen (Atome, Moleküle, Ionen) auszugleichen, bis eine vollständige Durchmischung des Systems vorliegt. Sie ist unabhängig von äußeren Einwirkungen und ist besonders auf nm- bis mm-Skalen wirksam. Im Gegensatz zur Diffusion wirkt die Konvektion vor allem in größeren Skalen und beschreibt den Strömungsmechanismus von Stoffbereichen, die zu einem erkennbaren Massestrom im Medium führen. Unter normalen Bedingungen ist Konvektion das deutlich wichtigere Transportmittel von Wärme und auch Materie. Das betrifft sowohl das eigentliche Fluid (in unserem Fall die Schmelze) als auch darin schwebende (feste, flüssige oder gasförmige) Fremdphasen (in unserem Fall die Partikel). Die Konvektion besitzt nachgewiesenermaßen einen erheblichen Einfluss auf diverse Parameter während des Kristallwachstumsprozesses.

Im Versuchsaufbau dieser Experimentreihen spielt von den natürlich auftretenden Konvektionsarten lediglich die Auftriebskonvektion eine Rolle. Die oberflächenspannungsgetriebene Marangonikonvektion oder Grenzflächenkonvektion kann vernachlässigt werden, da Setup-bedingt keine freien Flüssigkeitsoberflächen vorliegen. Die Auftriebskonvektion tritt innerhalb eines Schwerfelds auf, dass bei Dichtegradienten innerhalb im System einen statischen Auf- bzw. Abtrieb auslöst. Die Dichtegradienten entstehen durch Unterschiede der Temperatur (thermische Auftriebskonvektion) oder der Konzentration (solutale Auftriebskonvektion). Abhängig von der Richtung der Gradienten können sie sich positiv oder negativ überlagern und die Strömungsgeschwindigkeit beeinflussen. Da in unserem System aber lediglich reines, 18 M Ω H₂O verwendet wurde, können Konzentrationsunterschiede ausgeschlossen und die beobachtbare Konvektion auf das Auftreten von Dichteunterschieden verursacht durch lokale Temperaturunterschiede beschränkt werden.

Konvektionen können weiter in laminar, oszillierend oder turbulent strömend unterschieden werden. Die laminare Strömung besitzt eine bevorzugte Strömungsrichtung, wobei die Geschwindigkeit nur vom Ort abhängig ist. Ändert sich die Strömung und wird oszillierend oder turbulent, dann wird die Bewegungsgeschwindigkeit zusätzlich zeitabhängig. Mit zunehmenden Temperatur-Gradienten wird das Verhalten des Mediums turbulenter.

Ein typischer Nebeneffekt von Konvektionen ist die Ausbildung von Konvektionszellen (s. Abbildung 1). Es sei angenommen es liegt ein vertikal steigender Temperaturgradient in einem System vor, welches sich in einem Schwerfeld befindet. Das Medium wärmt sich auf tieferen Ebenen auf und wird leichter. Das Resultat ist ein Aufstieg zum kälteren Medium aufgrund des Dichteunterschieds. Es verliert beim Aufstieg zunehmend Wärme und wird wieder dichter. Da es nicht den gleichen Weg zurück absinken kann, sinkt es seitlich ab und erwärmt sich erneut. Der Zyklus wiederholt sich. Konvektionszellen können, neben dem beschriebenen Fall von Dichtegradienten, auch bei Oberflächengradienten auftreten.

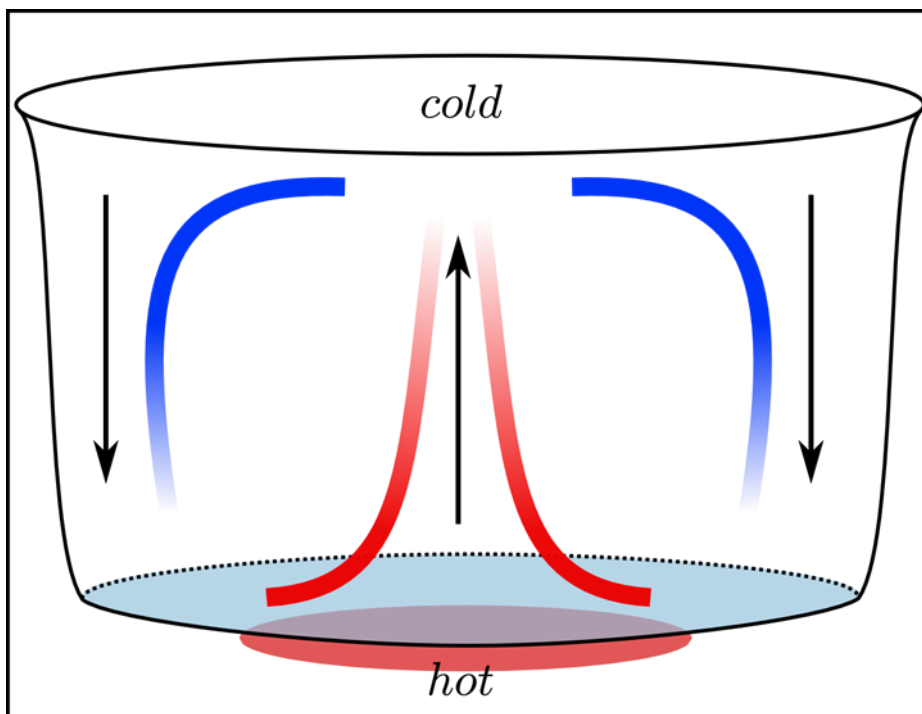


Abb. 2.1: Aufbau einer Konvektionszelle mit typischem Massefluss angetrieben durch thermische Unterschiede zwischen Boden und Oberfläche

Im vorangegangenen InSituKris-Vorhaben wurde erstmals beobachtet, dass die im Stoffsystem Wasser vorliegende Dichteanomalie dazu führt, dass gerade Partikel kleineren Durchmessers, während des Erstarrungsvorgangs von der Phasengrenze weggeschoben werden. Da das feste Wasser (Eis) mehr Raum beansprucht als die flüssige Phase findet während der Erstarrung eine permanente Raumforderung und damit Verdrängung des flüssigen Mediums statt. Wie weit der durch die Ausdehnung des erstarrenden Mediums wirkende Stofftransport im Fluid wirkt und inwieweit eine Überlagerung mit der natürlich vorliegenden Konvektion stattfindet, sollte mittels der Sichtbarmachung der Massebewegung mit Hilfe der sog. Schlieren-Methode dargestellt werden. Dazu wurde ein spezieller Aufbau, die Schlieren-Optik, an unser System angebaut und verschiedene

Versuche durchgeführt. Eine eingehende Darstellung der Grundlagen ist im folgenden Abschnitt erläutert, die zugehörigen Versuche sind in Kapitel 2.1.2 beschrieben.

Schlieren-Optik

Für das VIPer-Vorhaben war eine der Hauptzielsetzungen die Quali- und Quantifizierung des Einflusses des Gesamt-Massetransports auf das Einfangverhalten der Partikel. Aus diesem Grund soll der Massetransport im transparenten Medium sichtbar und direkt auswertbar gemacht werden. Hierzu wurde eine Methode gewählt, die mithilfe optischer Werkzeuge geringste Dichteunterschiede im Durchlicht sichtbar machen kann, die sog. Schlieren-Methode. In der Kristallzüchtung wird diese Methode häufiger eingesetzt, da sich sehr schnell und relativ einfach Lösungs- und Wachstumsparameter in einem System mit gewisser Transparenz erkennen lassen.

Die Schlieren-Optik befasst sich mit dem Aufbau von optischen Systemen, die transparente Phasenunterschiede als Abbildung auf einer Oberfläche projizieren. Paralleles Licht breitet sich einheitlich durch ein homogenes Medium aus. Beim Auftreffen auf eine andere Phase ändert sich, einhergehend mit der Dichte, der Brechungsindex. Bereits leichte Schwankungen im Medium, beispielsweise hervorgerufen durch Konvektionsströme, führen zu einer Brechung des Lichts. Die Schlieren-Optik visualisiert diesen Effekt (s. Abb. 2.2). Einzelne Lichtstrahlen werden durch Brechung am Schlieren-Prüfkörper von ihrem ursprünglichen Pfad abgelenkt. Diese werden dann teilweise oder vollständig an einer scharfkantigen Blende, meist in Form einer Rasierklinge, ausgelöscht. Das Resultat ist ein Unterschied der Helligkeit im Gegensatz zu den parallelaufenden Lichtstrahlen. Es gibt unterschiedliche Arten den Strahlengang aufzubauen, aufgrund unserer Anforderungen und den Limitierungen hinsichtlich der Dimensionen des Experimentaufbaus innerhalb eines Parabelflugracks haben wir uns für den sog. Töpler'schen Z-Aufbau entschieden. Beim Z-Aufbau wird das Licht mithilfe von Spiegeln 2-fach umgelenkt, so dass Lichtquelle, Schlieren-Prüfkörper und Schirm bzw. Kamera in einer Achse senkrecht zu Linsen bzw. Parabolspiegeln liegen.

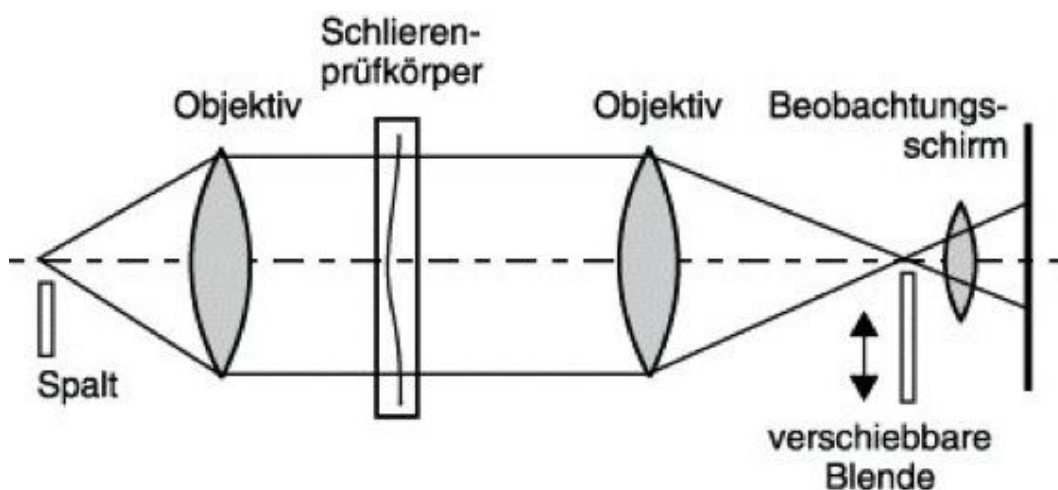


Abb. 2.2: Schema der Töpler'schen Methode zur Schlieren-Optik zur Abbildung von Phasen- bzw. Dichteunterschieden in Medien [Spe 24]

Zum Testen der aufgebauten Schlieren-Optik wurden im Rahmen von u.a. einer BSc-Abschlussarbeit mehrere Versuche durchgeführt, die das Auflösungsverhalten verschiedener Materialien beobachten und auswertbar machen. Die Versuche sind später in diesem Kapitel erwähnt. Als theoretische Grundlage gilt hier nur zu wissen, dass die Schlieren-Methode für die Beobachtung von Auflösungs- bzw. Wachstumsphänomenen hervorragend geeignet ist, da mit einem Wachstums- oder Auflösungsprozess in einem flüssigen Medium annähernd immer Dichteunterschiede am wachsenden bzw. sich auflösenden Körper entstehen. Meist besitzt die Lösung, also gelöster Stoff im Lösungsmittel, eine höhere Dichte als das Lösungsmittel alleine. Damit erkennt man einen Lösungsprozess sehr einfach daran, dass Fluid direkt unterhalb des Schlierenobjekts nach unten sinkt (s. Abb 2.3a). Beim Wachstum verhält es sich genau anders herum, da steigt das „leichtere“ Lösungsmittel nach oben (s. Abb. 2.3b). Mithilfe dieser Versuche wurde die Schlieren-Optik unseres Aufbaus an die Anforderungen unserer Experimente angepasst.

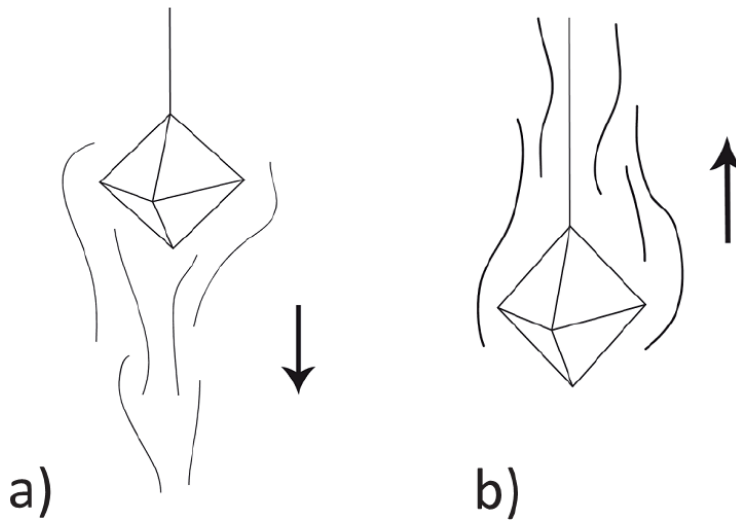


Abb. 2.3: Schlieren-Methode zur Bestimmung des Sättigungspunktes einer Lösung: a) Lösung nicht gesättigt, es findet Auflösung statt, b) Lösung übersättigt, es findet Kristallwachstum/Ausfällung statt. [Arg 21]

2.1.2 Vorversuche zum Schlieren-Optik Aufbau für die Parabelflugkampagne

Im Folgenden werden die Versuchsreihen, die zum Aufbau und zur Justierung des Schlieren-Optik-Aufbaus durchgeführt wurden, kurz erläutert. Wie bereits oben erwähnt, dient diese relativ einfache Methode in der Kristallzüchtung schon lange dem Zweck den Sättigungspunkt einer Lösung zu bestimmen. Feine Dichteunterschiede im Fluid können damit sichtbar gemacht werden und somit ein Auflösungsprozess oder ein Kristallisationsprozess direkt visualisiert werden. Ist das System frei von Schlieren, befindet es sich im Gleichgewicht.

Die Tabelle 2.3 zeigt die Substanzen, die für die verschiedenen Experimente eingesetzt wurden. Dabei wurden sowohl Stoffe eingesetzt, die eine hohe Löslichkeit in Wasser besitzen als auch Stoffe, die nicht löslich sind. Hier sollten Dichteunterschiede aufgrund unterschiedlicher Temperaturen und die daraus resultierende Konvektion im Medium Wasser visualisiert werden.

Tab. 2.3: Vorversuche zum Testen der Schlieren-Optik im VIPer-Aufbau

Substanz	Summenformel	Löslichkeit in H ₂ O (@ 20°C)	Referenz
Steinsalz/Meersalz	NaCl	317 g/l	[Ges 24b]
Kandiszucker	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁	1970 g/l	[Ges 24a]
Kupfersulfat-Pentahydrat	CuSO ₄ · 5H ₂ O	203 g/l	[Ges 24c]
Triglycinsulfat	C ₆ H ₁₇ N ₃ O ₁₀ S	212,6 g/l	[Gui 24]
Stein	N/A	-	

Experimentaufbau

Wie bereits oben erwähnt wurde für das Vorhaben ein Typ Z Schlieren-Optiksystem nach Töpler eingesetzt. Die Z-Anordnung des Experiments, die von oben betrachtet ersichtlich wird, verleiht dem Aufbau seinem Namen. Eine schematische Aufbauskitze ist in Abb. 2.4 gezeigt.

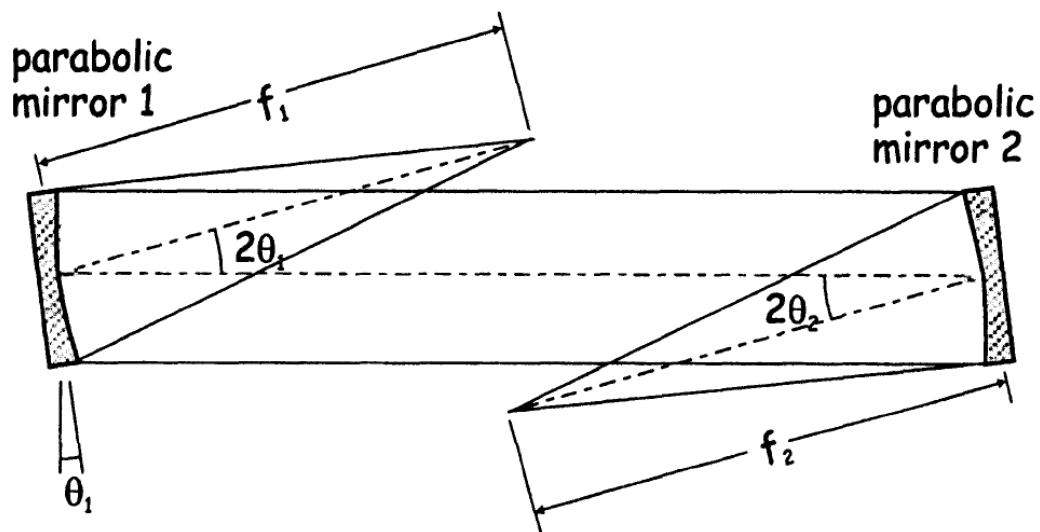


Abb. 2.4: Schematische Darstellung der Typ Z Variante des Töpler'schen Schlierenoptik-Aufbaus wie er in diesem Vorhaben zum Einsatz kam. [Pav 18]

Der Aufbau umfasst eine LED-Lichtquelle (MicroBrite LED mit Spot Light Geometrie, Advanced Illumination), die mit einer 1mm Lochblende erweitert wurde (s. Abb. 2.5), um das Licht zu bündeln. Weiterhin verfügt der Versuchsaufbau über zwei konkave TECHSPEC® Parabolspiegel gefertigt von der Firma Edmund Optics (Abb. 2.6) mit einer Brennweite f_a von je $444.50 \text{ mm} \pm 1 \%$ und einem Durchmesser von $(76.20 + 1.0/-0) \text{ mm}$.



Abb. 2.5: LED-Lichtquelle samt 1mm Lochblende der Schlieren-Optik-Aufbaus

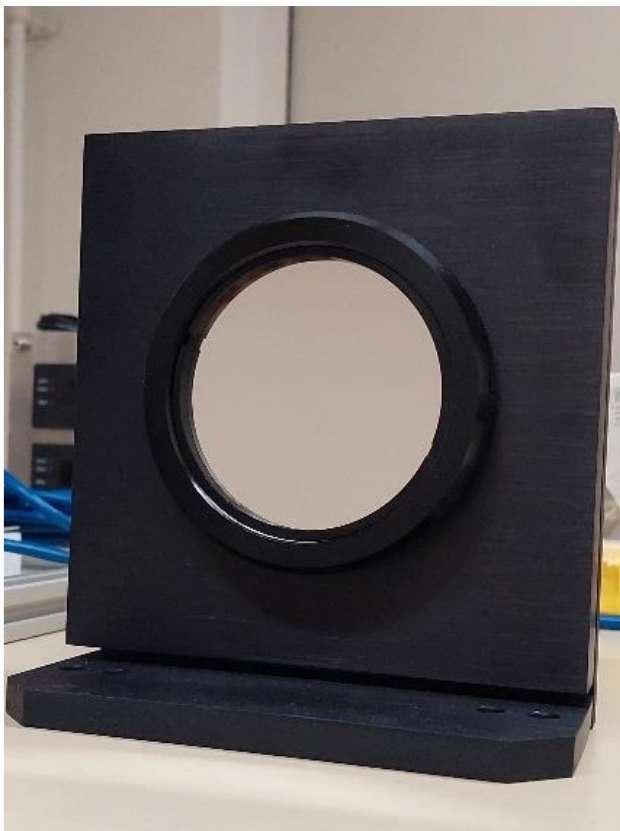


Abb. 2.6: Parabolspiegel (konkav)

Das Schlieren-Objekt darf diesen Durchmesser nicht überschreiten, da es sonst nicht mehr abgebildet werden kann. Beim Schlierenobjekt in diesen Versuchen handelt es sich um ein Gefäß aus optischem Glas mit planparallelen Seitenflächen, auch Küvette genannt. Diese besitzt eine Höhe von 38 mm, eine

Breite von 22 mm, eine Tiefe von 22 mm und einer „Probendicke“ von 18 mm. Die Küvette kann bis zu 10 ml Fluid aufnehmen. Eine handelsübliche Rasierklinge, welche von einem Stativ gehalten wird, dient als Messerblende. Schließlich besitzt der Aufbau eine Basler Digitalkamera mit einer räumlichen Auflösung von 3 MP und einer zeitlichen Auflösung von 120 fps, die die Aufnahme der Schlierenbeobachtungen ermöglicht. Der Abstand der Spiegel zur Lichtquelle sollte der Brennweite f der Spiegel entsprechen. Die Küvette wurde mittig zwischen den Parabolspiegeln positioniert und von parallelem Licht durchstrahlt. Der Abstand zwischen den Spiegeln orientiert sich an $2f$, wobei leichte Abweichungen vernachlässigt werden können. Die Spiegel sind mit einem Winkel θ zur Seite versetzt; folglich werden die Lichtstrahlen zueinander mit 2θ reflektiert. 2θ liegt bei $12^\circ \pm 1^\circ$. Aus der Entfernung f trifft das durch das Schlierenobjekt transmittierte Licht auf die Kante der Blende, welche es teilweise auslöscht. Schließlich wird das Licht von der Linse der Kamera erfasst und wird digital als Bild sichtbar.

Beim Versuchsaufbau musste zudem beachtet werden, dass Abbildungsfehler wie Astigmatismus und Koma begrenzt ausfallen. Zur Einschränkung dieser Effekte sollte θ möglichst klein ausfallen und beide Parabolspiegel mit dem gleichen Winkel versetzt sein. Zusätzlich sollte die Z-Anordnung des Experiments eingehalten werden.

Es wurden Untersuchungen zur quantitativen und qualitativen Beschreibung der Strömungen, die in einem Fluid entstehen können, angestellt. Dazu wurden drei Hauptbilder differenziert betrachtet. Die Betrachtung von Strömungen in Wasser:

- ohne Kristall
- beim Auflösen eines Kristalls und
- beim Wachstum eines Kristalls in einer übersättigten Lösung.

Um die Strömungsgeschwindigkeiten, die die Auswertung der Schlieren-Optik ergibt, zu verifizieren, wurden bei einzelnen Versuchen zusätzlich Glashohlkugeln in das Fluid gegeben. Diese Kugeln werden von den Konvektionsströmen mitgerissen und geben ebenso eine auswertbare Datenlage für auftretende Strömungsgeschwindigkeiten.

Für die Experimente wurden jeweils verschiedene Kristallite (in Substanz und Habitus) in ihre gesättigte Lösung eingehängt und mittels Temperatursteuerung über eine Heizplatte wurde das Lösen/Wachsen des Kristalls gesteuert. Die Heizplatte selbst musste im Bereich um die Küvette mit Fiberfrax®-Hochtemperaturdämmwolle abgedeckt werden, da die aufsteigende, erwärmte Luft das eigentliche Schlierenobjekt optisch überlagerte.

Ergebnisse zu fluidalen Strömungen ohne Kristall

Wasser bildet unter Raumtemperatur und ohne zusätzliche Heizung keine mittels Schlieren-Optik sichtbaren Strömungen aus. Strömungen werden erst bei aktivem Beheizen des Küvettenboden als Schlieren erkennbar (s. Abb. 2.7). Das Medium, welches nicht von den Strömungen beeinflusst wird, erscheint in einem mittleren Grauton, während strömende Materie entweder heller oder dunkler dargestellt ist. Eine leichte Zunahme der Helligkeit zur linken Seite des Bildes kann nicht gänzlich vermieden werden und hängt mit der Position oder Schärfe der Messerblende zusammen.

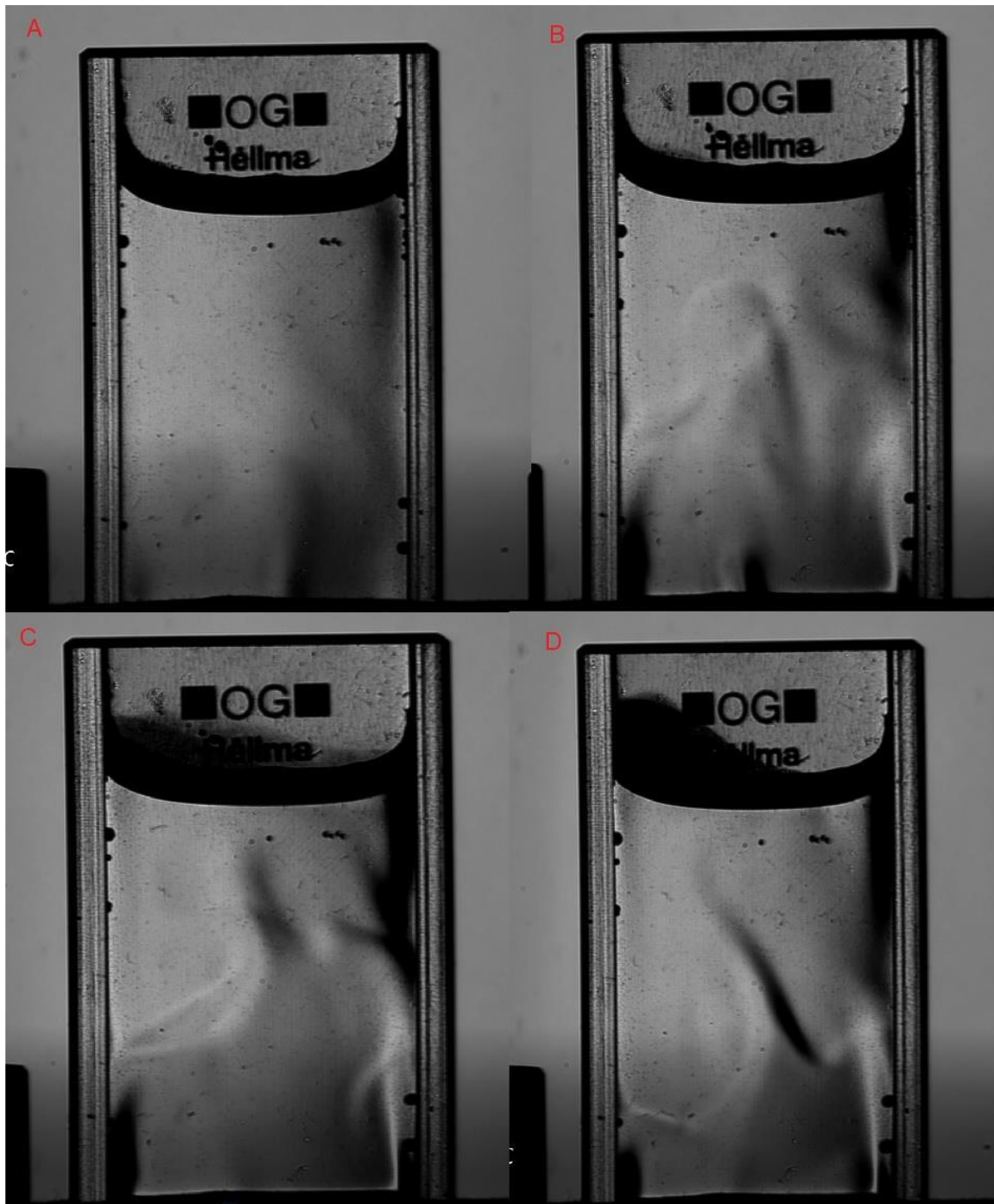


Abb. 2.7: Erkennbare Schlieren in reinem Wasser, welches vom Boden her zunehmend (A-D) erwärmt wird.

Wie bereits oben erwähnt wurden zur Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit in Wasser Glashohlkugeln als nicht-lösliche Fremdphasen-Partikel eingesetzt, die die Fluidbewegung nachverfolgen sollen (s. Abb. 2.8). Diese sind aufgrund einer ähnlichen Lichtbrechung wie Wasser und ihrer geringen Größe mit der Schlieren-Optik nur schwer sichtbar zu machen. Leicht zu verwechseln mit den Glashohlkugeln sind Luftbläschen, deren Bildung beim Erhitzen von Wasser nicht zu vermeiden ist.

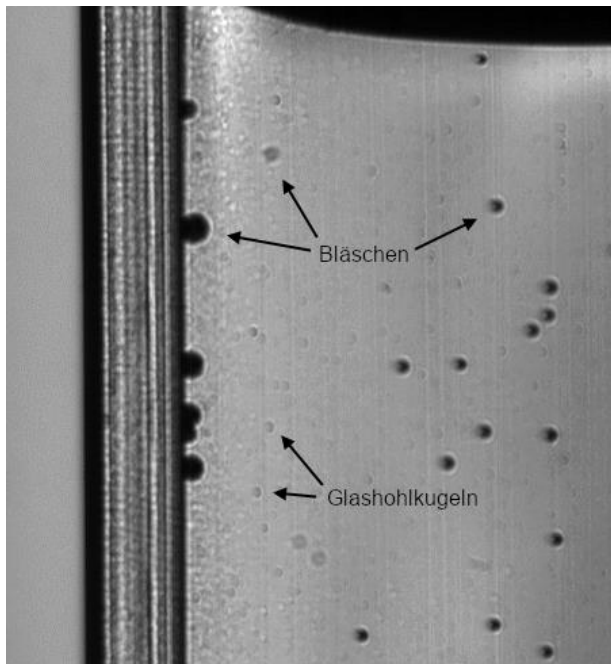


Abb. 2.8: Detailaufnahme einer wassergefüllten Küvette mit der Zugabe von Glashohlkugeln zum Tracking der Strömungsgeschwindigkeiten und einigen Gasbläschen am Küvettenrand

Um die Analyse der Geschwindigkeitsdaten in einem halb-manuell auswertbaren Rahmen zu halten, wurden diese Aufnahmen mit einer Auflösung von 40 fps aufgenommen. Die Positionsdaten wurden mithilfe des Programms ImageJ erfasst und so die Bewegungsgeschwindigkeit der Partikel berechnet. Da die Probe eine endliche Tiefe besitzt, die Aufnahme allerdings eine Projektion des Raumes auf eine Fläche dargestellt, muss ein relativ hoher Fehler für die Analysedaten angenommen werden, da Bewegungen parallel zur optischen Achse nicht erfasst werden können. Das Diagramm in Abb. 2.9 zeigt beispielhaft eine solche Geschwindigkeitsauswertung für reines Wasser unter einem bestimmten Verlauf von T .

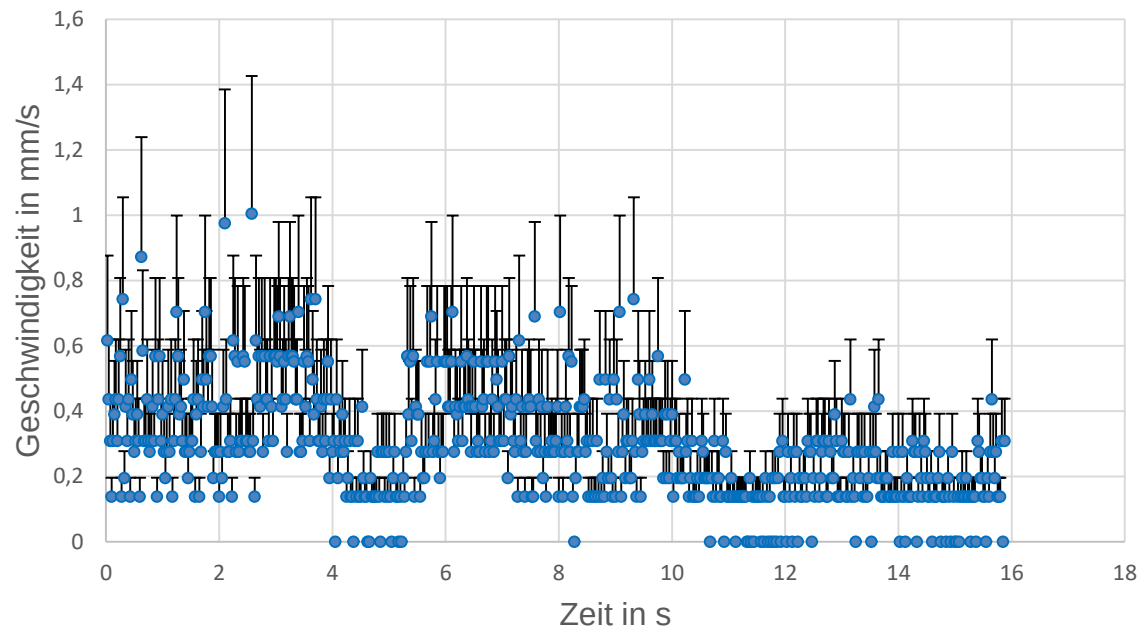


Abb. 2.9: Geschwindigkeitsdiagramm von Glashohlkugeln in einer mit Wasser befüllten und beheizten Küvette

Der Graph ähnelt einer Sinuskurve. Der Partikel erreicht eine Maximalgeschwindigkeit von 1 mm/s. Die Geschwindigkeit ist erwartungsgemäß in den unteren und oberen Umkehrpunkten der Konvektionszellen geringer als in den Bereichen dazwischen.

Ergebnisse zu fluidalen Strömungen mit Kristall

Wie in Tabelle 2.3 gelistet wurde eine Vielzahl an Versuchen zur Lösung und Kristallisation von verschiedenen Substanzen unter Schlieren-Beobachtung durchgeführt. Letztlich kann festgehalten werden, dass alle Prozesse optisch vergleichbar ablaufen und somit eine Justage des Systems sehr gut machbar war. Da es für das eigentliche VIPer-Vorhaben thematisch jedoch nur eine untergeordnete Rolle spielt, sollen hier nicht alle Experimente einzeln behandelt werden, sondern es wird nur eines exemplarisch dargestellt. Weitere Experimente sind in der BSc-Abschlussarbeit von Bastian d'Argent [Arg 21] und der MSc-Abschlussarbeit von Philipp Ott [Ott 21] (beide Kristallographie der Universität Freiburg) aus dem Jahr 2021 nachzulesen.

Exemplarisch wird hier das Auflösen eines Kandiskristalls genauer betrachtet. Dieser wird unter Erhitzen des Fluids mittig in Wasser eingehängt (s. Abb. 2.10). Auffällig sind die starken Turbulenzen, die sofort durch den Auflösungsprozess entstehen. Unterhalb des Kristalls bildet sich ein abwärts führender Strom. Diese Strömungsgeschwindigkeiten sind anfänglich deutlich höher als die ursprünglichen Auftriebskonvektionsströme in reinem Wasser. Mit der Zeit nehmen die Strömungsgeschwindigkeiten ab. Währenddessen bilden sich in der Lösung auf verschiedenen Höhen Horizonte, die entweder dünnlagig ausfallen oder sich zu einem größeren Horizont zusammenfügen. Diese erscheinen durch die Schlieren-Optik dunkel bis schwarz. Sie treten bevorzugt sowohl im Bereich des Küvettenbodens als auch auf Höhe des eingehängten Kristalls auf. Es ergeben sich ober- und unterhalb der Horizonte unterschiedliche Strömungsmuster. Oberhalb sind Strömungen zu erkennen,

die mit den Konvektionszellen ohne eingesetzten Kristall vergleichbar sind. Diese bleiben auch über die gesamte Aufnahme erhalten. Unterhalb verbleibt ein Strom vom Kristall, bis sich dieser von der Schnur löst und auf dem Boden abfällt. Anschließend verlangsamt sich der Auflösungsprozess und es sind einzelne, aufwärts bewegende, lineare Strömungsbewegungen zu beobachten. Dabei sind Bläschen zu erkennen, die auf eventuelle Lufteinschlüsse im Kristall vermuten lassen. Dieser Zustand verbleibt bis zur kompletten Auflösung des Kristalls, der schließlich zum Stillstand dieser Strömung unterhalb des Horizonts führt.



Abb. 2.10: Schlieren-Optik Aufnahme eines sich auflösenden Kandiszucker-Kristalls

Die Geschwindigkeit der Strömungen beim Einsetzen eines Kristalls konnte nicht ermittelt werden, da die Glashohlkugeln aufgrund der zu starken turbulenten Strömung und den entstandenen dunklen Horizonten nicht verfolgt werden konnten.

Als Beispiel für die Abbildung von Strömungsmustern bei stattfindendes Kristallwachstum wird einer der Versuche mit $\text{CuSO}_4 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$ hier beschrieben. Dazu wurde in eine bei 50°C gesättigte Lösung ein Kristall eingehängt und anschließend der Bodenheizer abgeschaltet, so dass die Lösung kontinuierlich an Temperatur verliert. Ab einem bestimmten Übersättigungspunkt, beginnt sich Feststoff an den Keimkristall anzuheften, d.h. der Kristall wächst. Die genauen Einwaagen, Temperaturen und Wachstumsparameter können [Arg 21] entnommen werden. Eine der ersten Beobachtungen, noch vor dem Einhängen des Keimkristalls, war, dass die Konvektionsbewegung in einer gesättigten Lösung deutlich besser, da kontrastreicher, darzustellen ist als in reinem Wasser. Zudem scheinen sich mehr Konvektionsrollen im gleichen Volumen zu bilden. Dies kann an einer veränderten Wärmeleitfähigkeit und -kapazität im Vergleich zum reinen Lösungsmittel liegen. Das Strömungsmuster änderte sich nur durch das Einhängen des Keimkristalls nicht, erst beim Absenken der Temperatur änderte sich das Muster zu laminar aufsteigend und das nicht nur im Bereich des Keimkristalls, sondern im gesamten

Gefäß (s. Abb. 2.11). Mit weiter sinkender Temperatur nimmt ebenso die Strömungsgeschwindigkeit ab.



Abb. 2.11: Strömungsmuster in einer Lösung von Kupfersulfat-Pentahydrat unter Wachstumsbedingungen (Übersättigung)

Zusammenfassend kann zu diesen Vorversuchsreihen gesagt werden, dass der verwendete Aufbau für die Schlieren-Methode funktional ist und sowohl thermische als auch solutale Dichtegradienten abgebildet werden können. Die Auswertung von absoluten Geschwindigkeiten ist jedoch herausfordernd, da lediglich eine zweidimensionale Projektion eines 3D-Körpers zur Verfügung steht. Ein Aufbau, der alle drei Raumdimensionen abdeckt, wäre sowohl aus Hardware-Sicht wie auch aus Software-Sicht um ein Vielfaches aufwendiger. Trotz der damit einhergehenden, theoretisch sehr hohen Fehler zeigen die Messdaten einen erwartungsgemäßen und nachvollziehbaren Verlauf, so dass davon auszugehen ist, dass der Aufbau insofern bestmöglich konzeptioniert wurde, dass fluidale Bewegungen maßgeblich in der Projektionsebene stattfinden und nicht in einem größeren Winkel dazu. Die Testphase und Justierung der Schlieren-Optik für das VIPer-Vorhaben war mit diesen Versuchsreihen erfolgreich und weitestgehend abgeschlossen.

Testreihen zu Partikel verschiedener Größen zur Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeiten

Partikel verschiedener Größe wurden in einer Testreihe eingesetzt um festzustellen, welchen Einfluss der Partikel-Durchmesser auf die getrackte Geschwindigkeit hat. Aufgrund der engen Toleranzen der Streuung der Mittelwerte der Partikeldurchmesser und ihres hohen optischen Kontrasts zum umgebenden Fluid, wurden hierfür ausschließlich sphärische, unbeschichtete Polystyrol-Partikel verwendet. Folgende Partikeldurchmesser wurden bei vergleichbaren thermischen Bedingungen in einem Bereich höherer (45-52°C) und niedrigerer Temperatur (30-35°C) in H₂O getestet:

- 20 µm
- 55 µm
- 60 µm
- 100 µm

Für jede Messung wurde eine Partikelsorte in die Testküvette eingebracht und über eine Spanne von 800-1.000 frames bei einer Aufnahmegeschwindigkeit von 10 fps beobachtet. Da die einzelnen Partikel nicht immer über die gesamte Beobachtungsdauer trackbar waren, variiert die individuelle Beobachtungsdauer.

Im Folgenden sind die Auswertungen der Partikelgeschwindigkeiten aufgeführt, detailliertere Informationen zur Methode, Analyse und Fehlerrechnung sind in [Ott 21] beschrieben.

20 µm-Partikel:

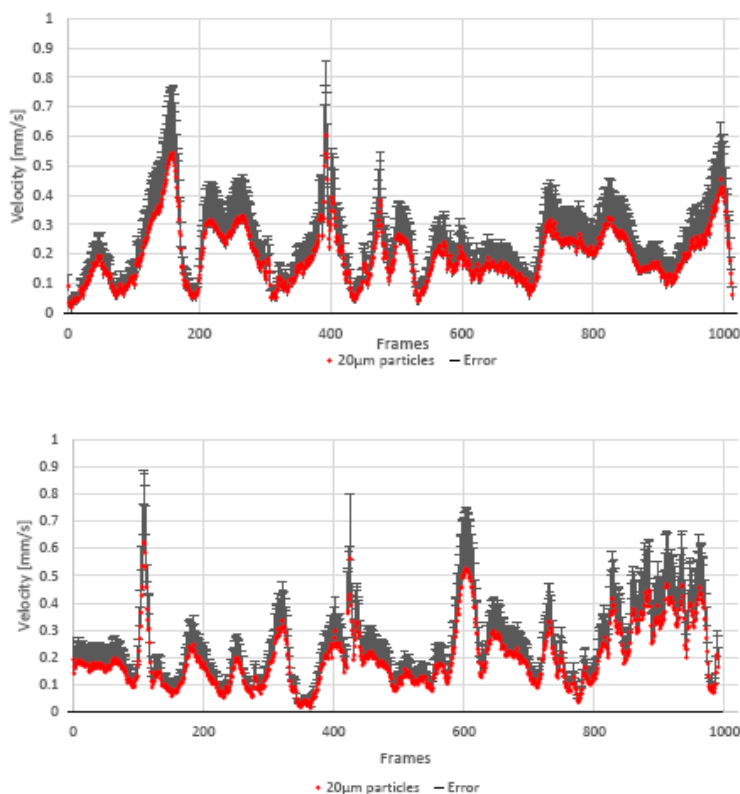


Abb. 2.12:
Getrackte Geschwindigkeiten von Partikeln mit einem Durchmesser von 20 µm in kälterem (30-35°C) H₂O (oben) und wärmerem (45-52°C) H₂O (unten)

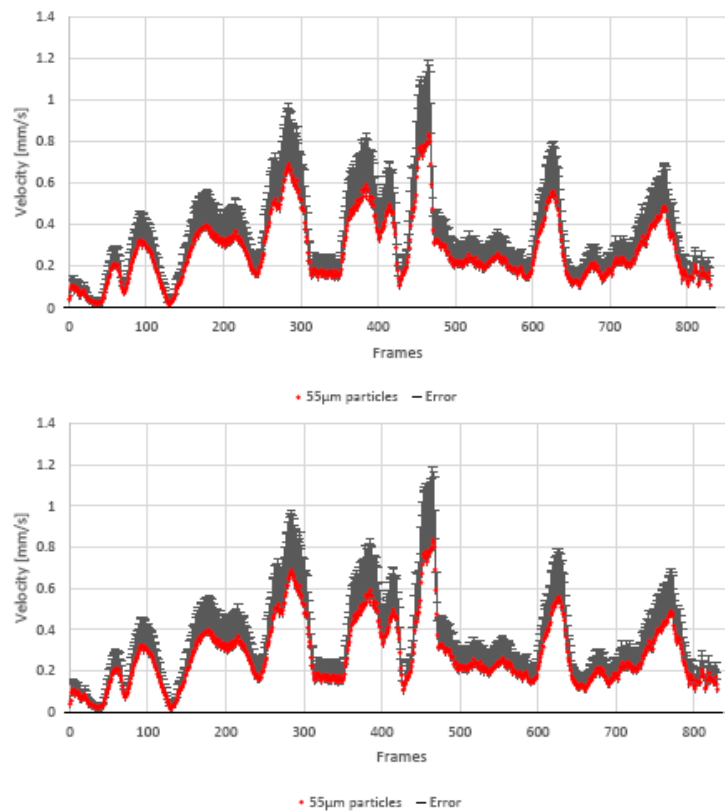
55 μm -Partikel:

Abb. 2.13:

Getrackte Geschwindigkeiten von Partikeln mit einem Durchmesser von 55 μm in kälterem (30-35°C) H_2O (oben) und wärmerem (45-52°C) H_2O (unten)

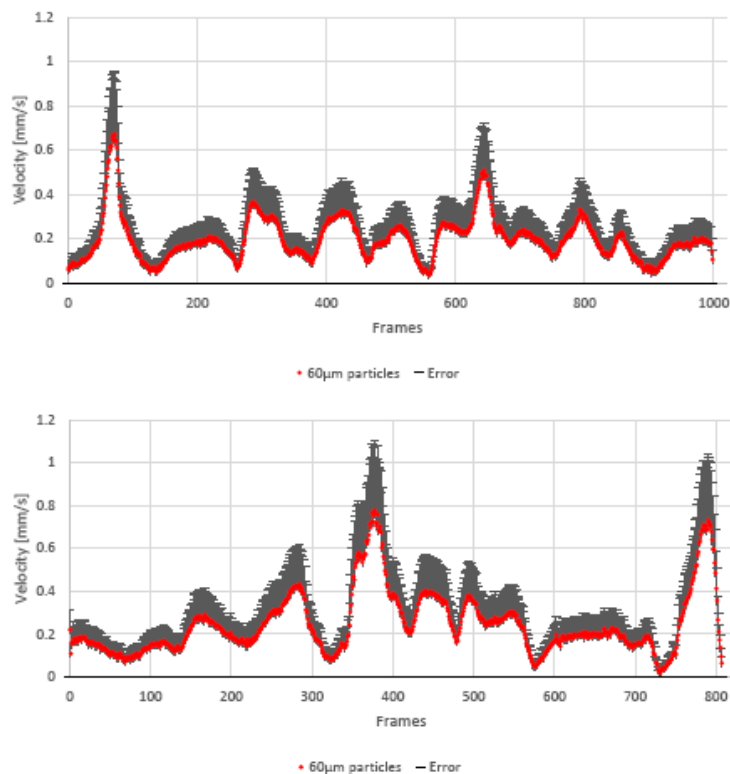
60 μm -Partikel:

Abb. 2.14:

Getrackte Geschwindigkeiten von Partikeln mit einem Durchmesser von 60 μm in kälterem (30-35°C) H_2O (oben) und wärmerem (45-52°C) H_2O (unten)

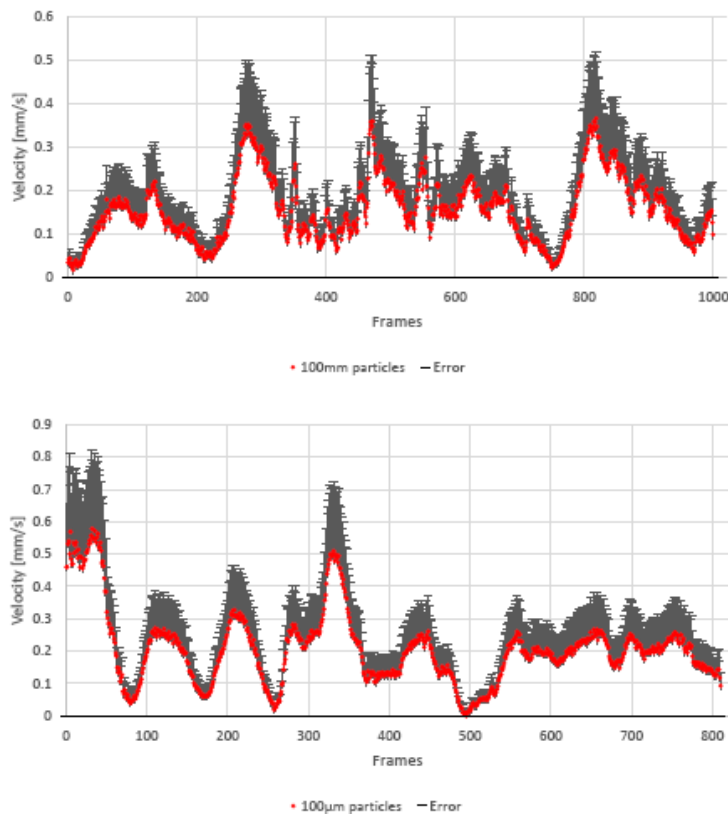
100 μm -Partikel:

Abb. 2.15:
Getrackte Geschwindigkeiten von Partikeln
mit einem Durchmesser von 100 μm in
kälterem (30-35°C) H₂O (oben) und
wärmerem (45-52°C) H₂O (unten)

Die Ergebnisse der Auswertung der Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit der Partikelgrößen ist in folgender Tabelle 2.4 und im Diagramm in Abb. 2.16 dargestellt.

Tab. 2.4: Geschwindigkeitsdaten verschieden großer Partikel in H₂O bei unterschiedlichen Temperaturen

Partikel [μm]	Temperaturbereich [°C]	Durchschnittliche Geschwindigkeit [mm/s]	Top 10 Perzentile Geschwindigkeit [mm/s]
PS 20	30-35	0,20	0,39
PS 20	45-52	0,20	0,43
PS 55	30-35	0,16	0,44
PS 55	45-52	0,28	0,61
PS 60	30-35	0,20	0,41
PS 60	45-52	0,25	0,60
PS 100	30-35	0,16	0,31
PS 100	45-52	0,21	0,48

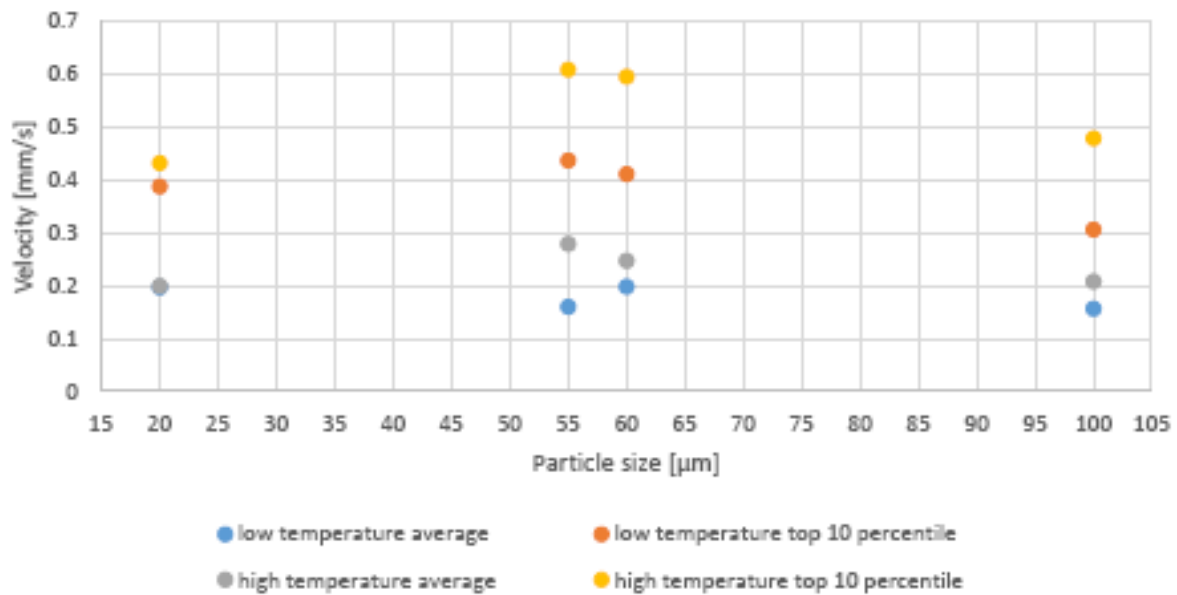


Abb. 2.16: Diagramm zum Vergleich der ermittelten Partikelgeschwindigkeiten in Abhängigkeit ihres Durchmessers und den Umgebungstemperaturen

Die Datenanalyse ergab, dass der Unterschied der Durchschnittsgeschwindigkeiten in Abhängigkeit der Temperatur marginal ist. Die Partikelgröße hat einen etwas größeren Einfluss, ist aber immer noch sehr gering. Allerdings ergibt sich eine beachtliche Differenz zwischen den Durchschnittsgeschwindigkeiten und den Höchstgeschwindigkeiten auf der 10. Perzentile und hier zeigt sich zusätzlich auch eine größere Temperaturabhängigkeit. Mit zunehmender Temperatur werden die Maximal-Geschwindigkeiten wesentlich höher. Wie zu erwarten war, ergeben sich für die Partikel mit den Durchmessern 55 μm und 60 μm sehr ähnliche Geschwindigkeiten, allerdings unerwartet ist, dass die Partikel, die eigentlich die mittleren Durchmesser abbilden, die höchsten Geschwindigkeiten aufweisen. Sowohl die kleineren, 20 μm Partikel als auch die größeren, 100 μm Partikel zeigen vergleichsweise geringere Geschwindigkeiten. Aufgrund der identischen thermischen Verhältnisse und auch aller anderen externen Einflussgrößen können die Daten trotz des hohen theoretischen Fehlers direkt miteinander verglichen werden.

2.1.3 Arbeiten zur Parabelflugkampagne

Mitte der Jahres 2021 wurde uns mitgeteilt, dass sich für das VIPer-Experiment eine Flugmöglichkeit auf der 38. DLR-Parabelflugkampagne im Februar 2022 ergibt. Der Aufbau des Parabelfluggacks, welches unser Experiment entsprechend aller Sicherheitsvorgaben der Firma Novespace behausen sollte, wurde über einen Zeitraum von insgesamt 8 Monaten von den in diesem Vorhaben beschäftigten Mitarbeitern konstruiert und aufgebaut. Lediglich die Programmierung der LabView-Steuerung des Experiments wurde an einen externen Dienstleister übergeben, da die Kompetenzen dafür an der Universität Freiburg nicht verfügbar waren. Anfang Januar 2022 kam ein Mitarbeiter der Firma Novespace zur Begutachtung des Experimenttracks nach Freiburg und hat dieses geprüft und mit kleineren Nachbesserungsvorgaben zugelassen. Die Nachbesserungen umfassten das Anbringen von 8

Thermoswitches an die Peltier-Elemente, um bei einer ungewollten, spontanen Umpolung der Peltier-Elemente deren Stromversorgung zu kappen. Das Rack konnte erfolgreich und funktionstüchtig zu Kampagnenbeginn nach Paderborn gebracht werden. Die Corona-Auflagen, insbesondere die Notwendigkeit eines negativen PCR-Tests, dessen Probenentnahme bei Ankunft am Flughafen Paderborn weniger als 48h alt sein darf, haben die Anreiseplanung für einen Montag stark erschwert.

Das Parabelfluggack wurde als geschlossenes Rack konstruiert, dafür gab es mehrere Gründe:

1. Um die Kondensation von Luftfeuchtigkeit auf den Gläsern der gekühlten Experimentzelle zu verhindern, musste das Experiment in einer trockenen Schutzatmosphäre durchgeführt werden. Dies war eine Vorsichtsmaßnahme, da rein rechnerisch die theoretische Luftfeuchtigkeit im Flugzeug bei laufenden Lüftung gerade niedrig genug sein müsste, dass der Taupunkt bei -8°C , die an der Experimentzelle anliegen, noch nicht zu einem Beschlagen führen dürfte. Da uns die Firma Novespace im Vorfeld jedoch nicht versichern konnte, dass die Grenzwerte der Luftfeuchtigkeit nicht überschritten werden, wurde beschlossen, dass Experiment in trockener und definierter Atmosphäre zu betreiben. Sollten die Scheiben beschlagen, wäre die Probe nicht mehr erkennbar und das Experiment nicht auswertbar.
2. Da unser Experiment einen Kühlwasserkreislauf benötigt und das Kühlwasservolumen 500ml knapp überschritten hat, war ein Double-Containment des Experiments seitens Novespace vorgeschrieben.
3. Im geschlossenen Rack konnte das Experiment im Dunkeln betrieben werden, so dass kein externes Licht störenden Einfluss haben kann.
4. Aufgrund der Verwendung von Peltier-Elementen, die über das Anlegen einer Spannung eine kältere und eine wärmere Seite produzieren, und einer scharfkantigen Messerblende ergaben sich nach der Firma Novespace multiple Verletzungsrisiken, die unter Verwendung einer kompletten Umhüllung entschärft werden konnten.

Abbildung 2.17 zeigt schematisch den Aufbau und die Komponenten, wie sie für die Parabelflug-Experimente geplant und eingesetzt wurden.

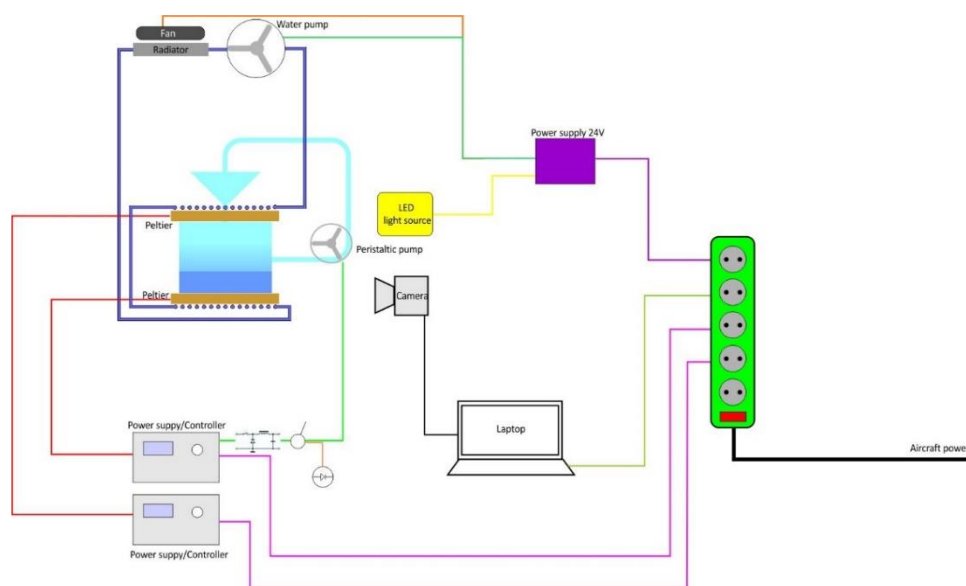


Abb. 2.17: Schematischer Aufbau des VIPer-Experiments im Parabelflug

In den Abbildungen 2.18 und 2.19 ist das Experimentrack schematisch einmal in der Seiten- und nochmals in den beiden Frontansichten dargestellt. Alle Komponenten und Positionen im Rack wurden so von Novespace abgenommen. Abbildung 2.20 zeigt 2 Fotos des Racks.

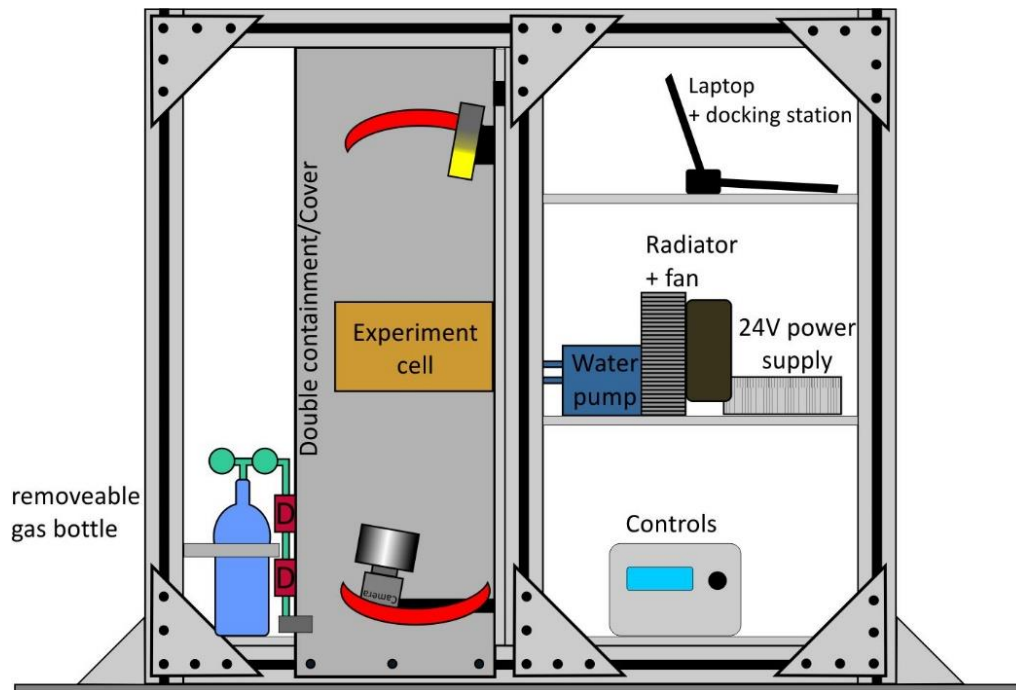


Abb. 2.18: Schematische Darstellung des kompletten VIPer-Experimenttracks in der Seitenansicht

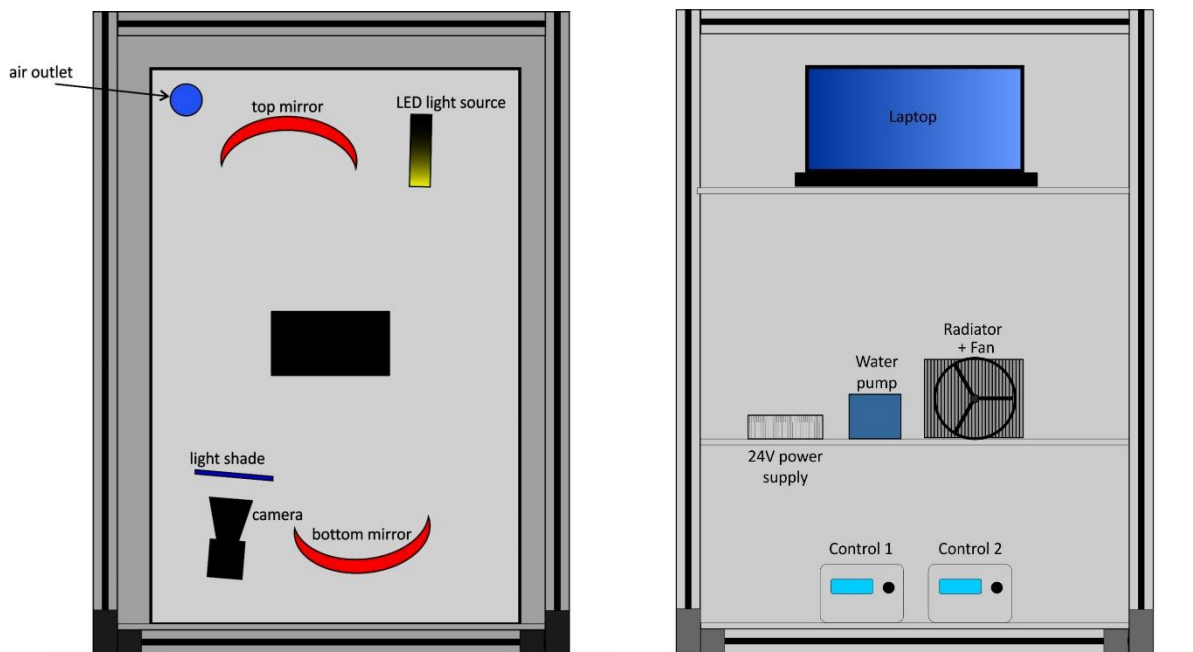


Abb. 2.19: Schematische Darstellung des kompletten VIPer-Experimenttracks in den beiden Frontansichten der Experimentseite (links) und der Steuerungsseite (rechts)

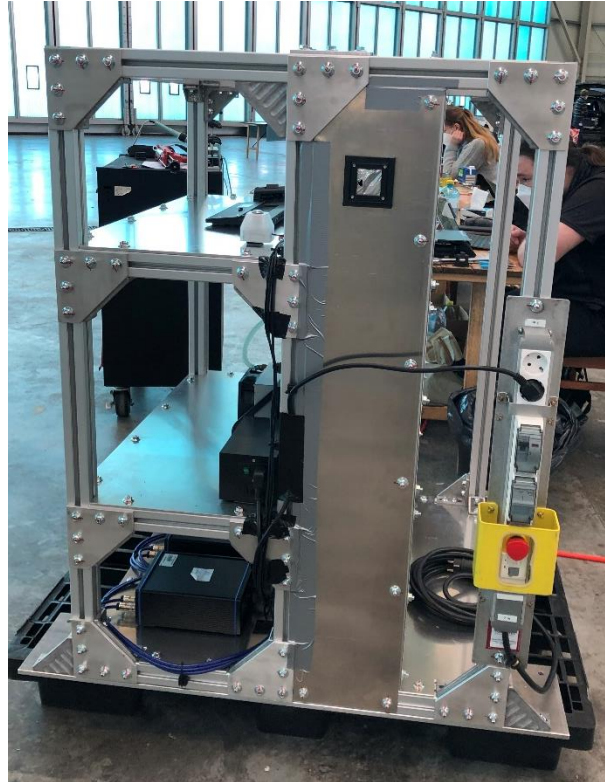


Abb. 2.20: Fotos des VIPer-Parabelflugracks

Die folgenden Abbildungen 2.21-2.24 zeigen sowohl den schematischen Aufbau der Experimentzelle als auch ein Foto dieser Zelle mit den zusätzlich angebrachten Thermoswitches.

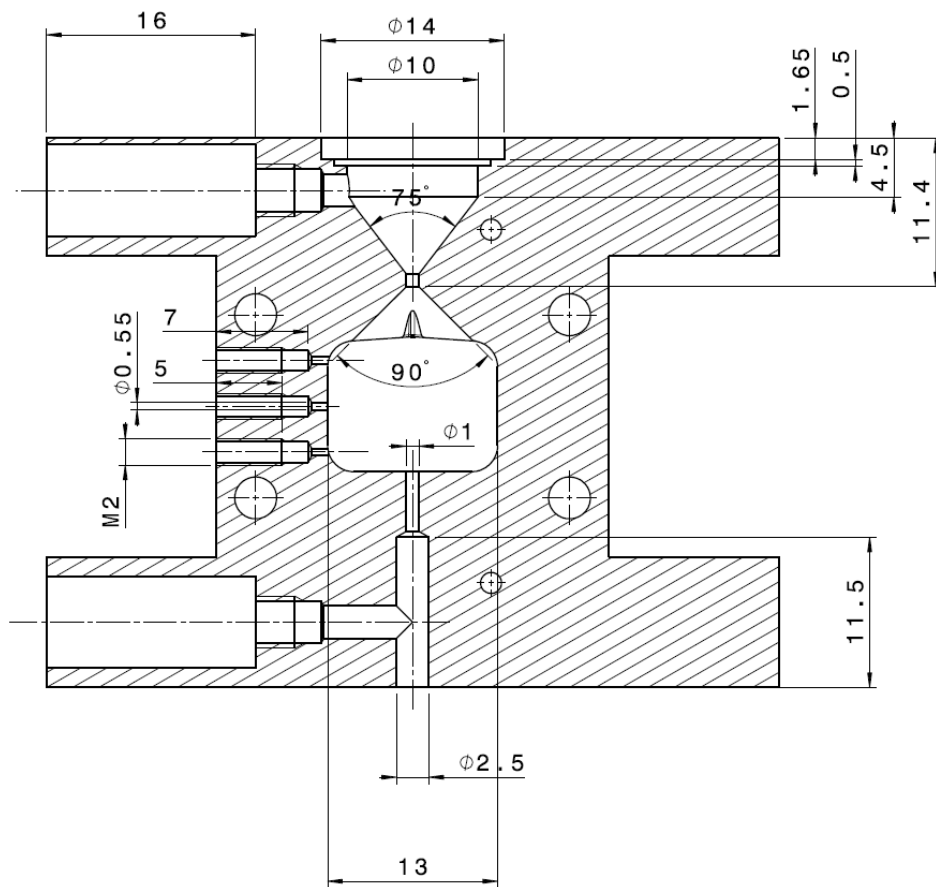


Abb. 2.21: Bemaßte, schematische Zeichnung der Experimentzelle, für das VIPer-Experiment wurde die Zelle leicht verändert: die obere und untere Thermoelementeinführung auf der linken Seite wurden geschlossen und die mittlere Thermoelementeinführung wurde als Zuleitung für das flüssige Wasser und zum Einspülen der Partikel umfunktioniert.

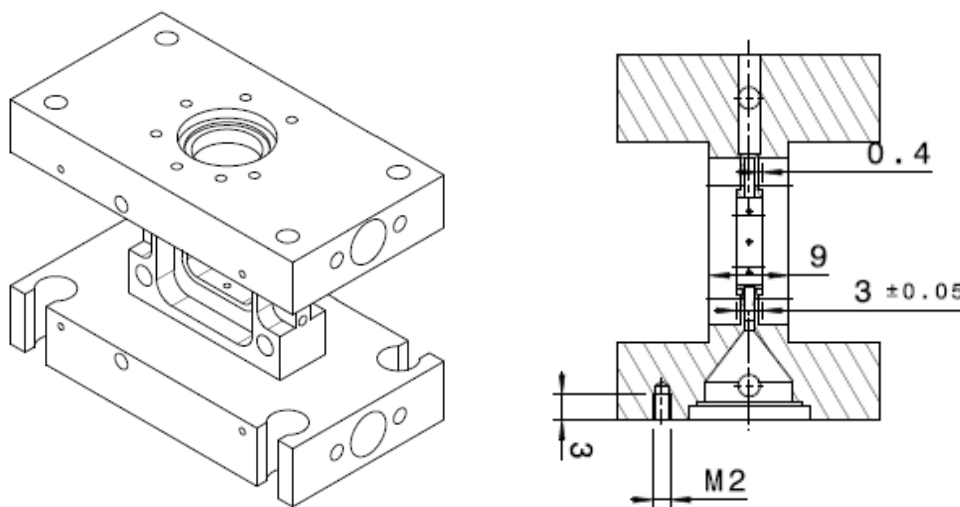


Abb. 2.22: Schematische Darstellung der VIPer-Experimentzelle

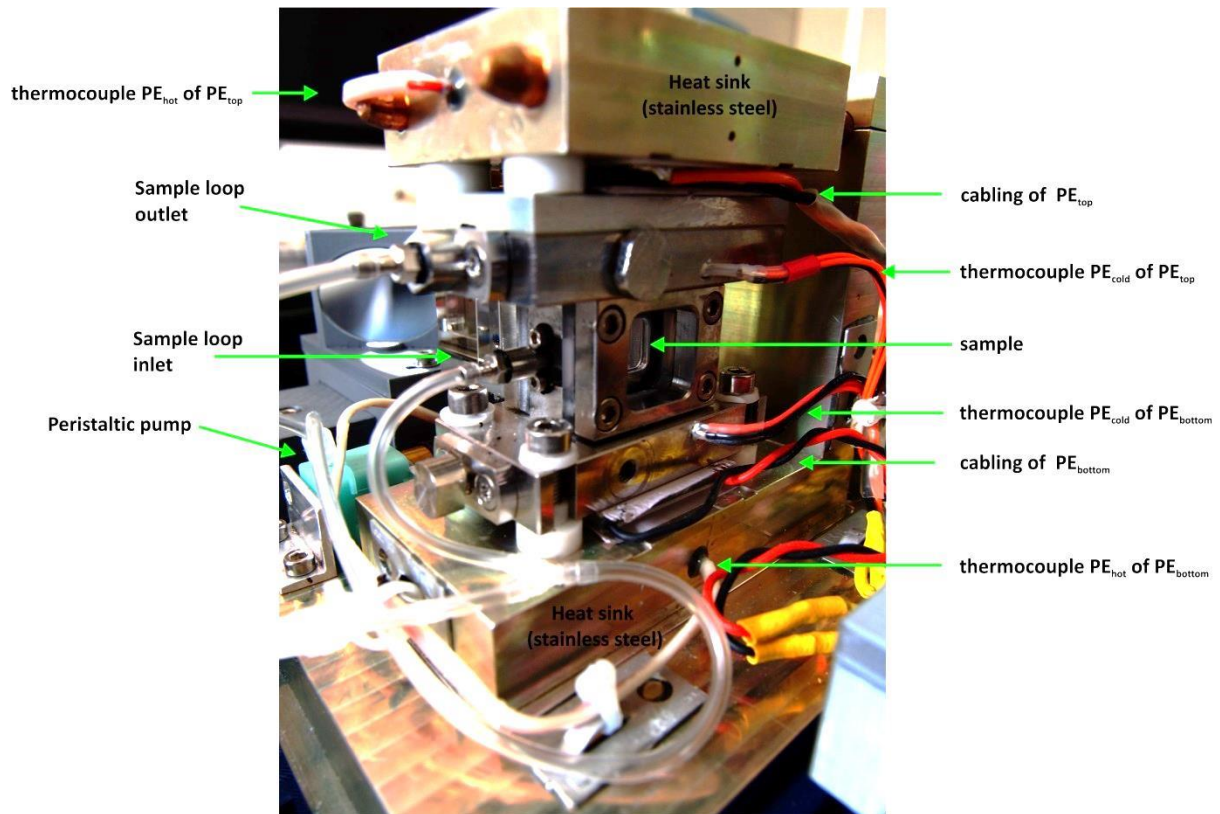


Abb. 2.23: Foto der VIPer-Experimentenzelle mit Bauteilbeschreibung

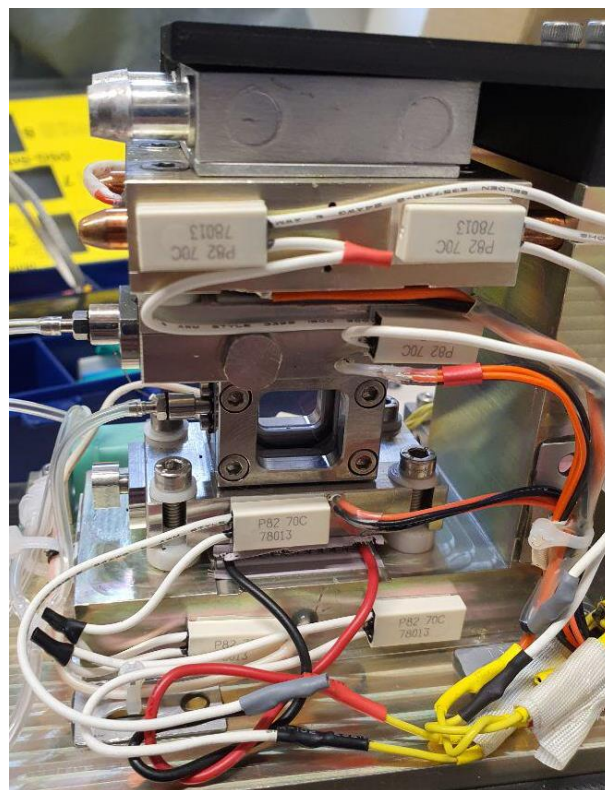


Abb. 2.24: Foto der VIPer-Experimentenzelle mit zusätzlichen Thermoswitches an den Peltierelementen

Untersuchungen zur Unterscheidbarkeit der unterschiedlichen Partikel

Im Rahmen der Vorversuche zu sowohl den Parabelflugexperimenten als auch dem TEXUS-Experiment wurde die Unterscheidbarkeit der verschiedenen Partikelsorten getestet. In Tabelle 2.2 sind alle in diesem Vorhaben verwendeten Partikelsorten aufgelistet. Für die Betrachtung der Partikel-Phasengrenzen-Interaktion wurden in den Parabelflügen jedoch nur die Partikel mit größeren Durchmessern, d.h. $100\mu\text{m}$, $300\mu\text{m}$ und $500\mu\text{m}$ eingesetzt. Um zu verifizieren, ob die unbeschichteten, blauen Partikel sich von den beschichteten, goldenen Partikeln während des Experiments optisch unterscheiden lassen, wurden in Vorbereitung mehrere Versuche durchgeführt. Exemplarisch dafür sind in der Abbildung 2.25 die beiden Partikelsorten jeweils im Durchmesser $500\mu\text{m}$ im Durchlicht des Experimentaufbaus dargestellt.

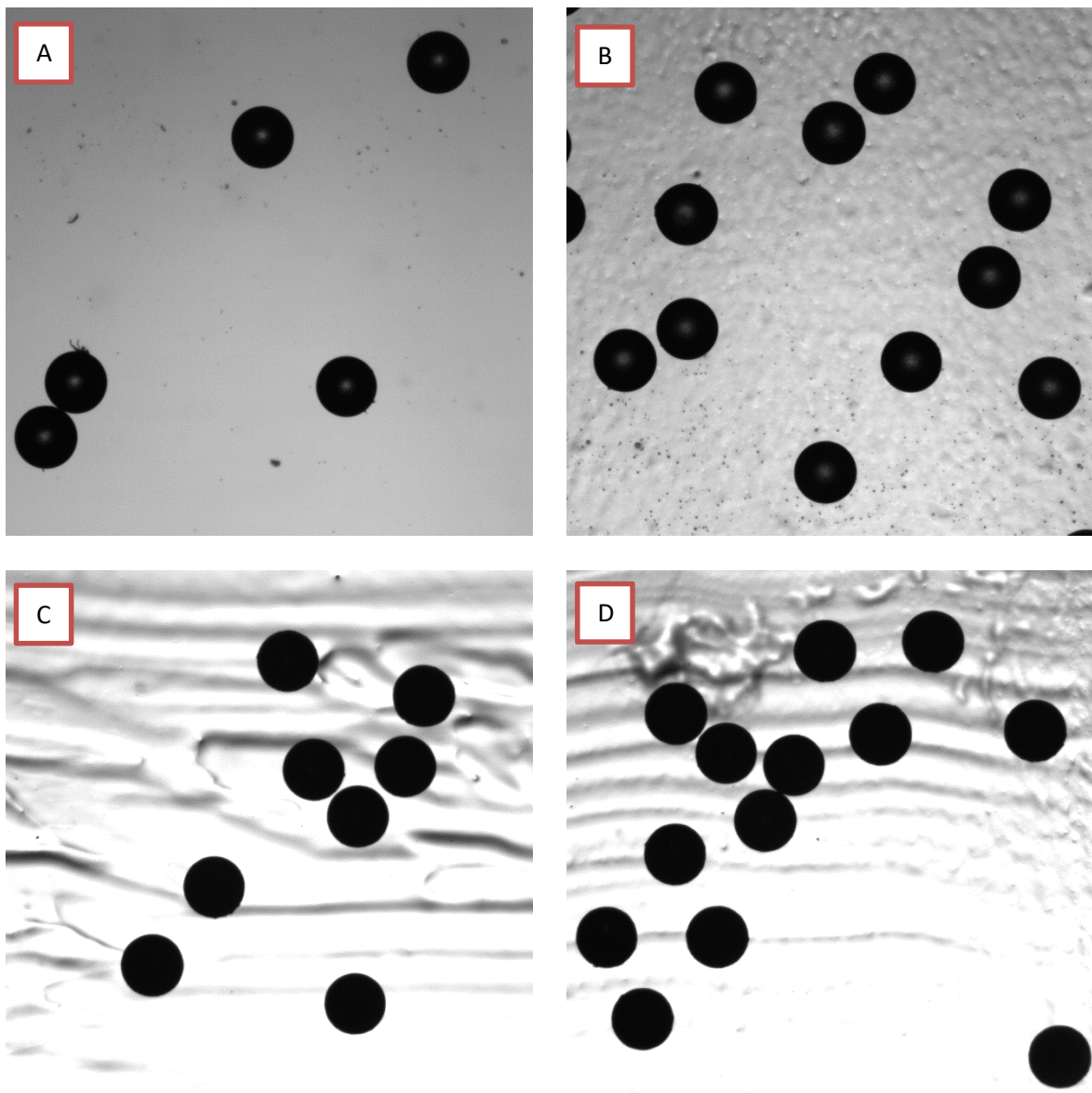


Abb. 2.25: verschiedene PS-Partikel im Durchlicht; unbeschichtete, blaue Partikel frei schwebend in flüssigem Wasser (A) und eingebaut in erstarrtem Eis (B), (C) und (D) zeigen jeweils Au/Ag-beschichtete Partikel

Anhand der Bilder können die unbeschichteten und beschichteten Partikel relativ einfach unterschieden werden. Die unbeschichteten Partikel zeigen mittig einen helleren Punkt, da sie lichtdurchlässig sind. Aufgrund der lichtbrechenden Eigenschaften sind sie nur in Mitte hell und bilden

dennoch einen gut erkennbaren Kontrast zum sie umgebenden Medium. Die Au/Ag-beschichteten Partikel erscheinen dagegen opak. Aufgrund der exakt sphärischen Form der Partikel kann bei bekannter Vergrößerung der Optik der Durchmesser ebenfalls direkt bestimmt werden. Aus diesen Gründen war die nachträgliche Unterscheidung der Partikel gesichert.

In den Vorversuchen wurde auch ein potentiell Agglomerationsverhalten der Partikel untersucht um eine potentiell kritische Partikelkonzentration zu bestimmen. Trotz zahlreicher Versuche, auch mit sehr hohen Partikelkonzentrationen, wurde die Bildung von Agglomeraten nicht beobachtet.

Experimente unter Schwerelosigkeit im Parabelflugzeug

Die 38. DLR-Parabelflugkampagne wurde Anfang Februar 2022 Corona-bedingt am Standort Paderborn durchgeführt. Dabei wurden 3 Flugtage und damit 93 Parabeln für das VIPer-Experiment genutzt.

Das Hauptziel der Experimente auf dieser Kampagne war die qualitative und quantitative Bestimmung der fluidalen Strömungen um die großen Partikel herum sobald bzw. kurz bevor die Phasengrenze des wachsenden Kristalls diesen „berührt“. In früheren Versuchen wurde vornehmlich bei kleineren Partikeln ein Schieben dieser beobachtet bevor sie eingefangen und in den wachsenden Kristall eingebaut wurden. Ob dieses Schieben jedoch von einer direkten Interaktion des Partikels mit der Phasenfront oder lokal veränderten Strömungen verursacht wird, konnten bislang auch Simulationsmodelle nicht beantworten. Aus diesem Grund sollte dieses Phänomen auf einer möglichst großen Skala direkt im transparenten Modellsystem systematisch untersucht werden. Eine neuere Theorie, die aus den Erkenntnissen des InSituKris-Vorhabens abgeleitet wurden, war, dass die bei der Kristallisation entstehende Kristallisationswärme einen Einfluss auf die Fluidbewegungen direkt vor der Phasengrenze haben könnte. Mit der Entstehung zusätzlicher Wärme gehen auch Dichteunterschiede im Fluid einher, die mittels Schlieren-Methode sichtbar gemacht werden können. Da die unter Normalbedingungen vorkommende massive Auftriebskonvektion diese Fluidbewegung einschränken würde, mussten die Versuche unter μg stattfinden. Zusätzlich sollte der Einfluss von erhöhten g -Kräften im System weitere Erkenntnisse liefern. Um den Wärmetransport zusätzlich beeinflussen wurden Partikel mit unterschiedlichen, oberflächlichen thermischen Eigenschaften ausgewählt. Während Polystyrol eine eher geringere Wärmeleitfähigkeit von $0,03\text{--}0,04\text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ aufweist liegt diese von Gold (Au) mit $310\text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ um circa 4 Größenordnungen höher. Damit sollte ein Einfluss der thermischen Oberflächeneigenschaften direkt nachweisbar sein.

Da ein Probenwechsel nur am Ende eines Flugtages möglich war, wurden die Experimente so geplant, dass an jeden der 3 geplanten Flugtage eine andere Probenkonfiguration eingesetzt wurde. Ursprünglich sollten die unbeschichteten und beschichteten Partikel an den Flugtagen 1 und 2 jeweils getrennt untersucht werden und am dritten Flugtag eine Mischung der Partikelsorten. Dabei sollten jeweils Partikel der Größen $300\mu\text{m}$ und $500\mu\text{m}$ zum Einsatz kommen.

Aufgrund der nicht-permanenten Schwerelosigkeit während des Parabelflugs wurde die Probenorientierung von Beginn an so geplant, dass der g -Vektor senkrecht zur Wachstumsrichtung der Probe orientiert ist. Wäre beide Richtungen parallel würden die Partikel aufgrund ihrer leicht höheren Dichte vor allem in den Hyper- g -Phasen der Parabel zur Phasengrenze hinuntergedrückt und sofort eingebaut werden. Damit stünden sie nach der ersten Parabel für das restliche Set nicht mehr zur Verfügung. Aus diesem Grund wurde die liegende Konfiguration gewählt, so werden die Partikel in

Anwesenheit von Schwerkraft lediglich gegen die Scheibe der Experimentzelle gedrückt, bleiben im Prinzip aber frei verschiebbar, sobald sich die Phasengrenze dem Partikel nähert.

In Vorbereitung auf den ersten Flugtag wurde das Experiment mit den blauen, unbeschichteten Partikeln bestückt. Die Partikel wurden dazu in den Vorratsbereich im Zuleitungsschlauch der Zelle kurz vor der Öffnung zur Zelle injiziert. Leider konnten die Partikel im gesamten Verlauf der 31 Parabeln des ersten Flugtages nicht in die Zelle eingespült werden. Dieses Problem war bis dato unbekannt und konnte trotz zahlreicher Versuche, wie z.B. Vorwärts- und Rückwartsspülen, Erschütterungen, Einspülversuche unter verschiedenen Schwerkraftbedingungen, nicht gelöst werden. Die gerichtete Erstarrung der Probe gelang dagegen problemlos und auch das restliche System funktionierte einwandfrei. Aufgrund der fehlenden Partikel konnten allerdings am ersten Flugtag keine auswertbaren Daten generiert werden.

Um das Problem des ersten Flugtages zu vermeiden, wurden die Partikel für den zweiten Flugtag direkt in die Experimentzelle injiziert. Dieses Vorgehen stellte die erfolgreiche Durchführung aller geplanten Experimente während der 31 Parabeln und für die 1g-Referenzexperimente zwischen den Parabelsets am zweiten Flugtag sicher. Da uns nun aber ein kompletter Flugtag in der Datenerhebung fehlte, wurde beschlossen am dritten Flugtag gleich die Partikelmischung zu prozessieren und auf den Einsatz von nur beschichteten Partikeln zu verzichten. Ein Foto der vorbereiteten Zelle des letzten Flugtages ist in Abbildung 2.26 zu sehen.



Abb. 2.26: Mit Partikeln bestückte Zelle des VIPer-Experiments am dritten Flugtag, es wurde eine Mischung aus unbeschichteten (blauen) Partikeln und beschichteten (goldfarbenen) Partikeln eingesetzt. Beide Sorten sind gut zu erkennen.

Die Analyse der Daten der Parabelflug-Experimente zeigte, dass der schlierenoptische Aufbau sehr anfällig auf Vibrationen und Erschütterungen ist. Selbst die Vibrationen, die in den μg -Phasen der Parabel auftraten, störten den Aufbau in einer Weise, dass die Aufnahme von Schlieren und damit der

Fluidbewegungen um die Partikel nicht möglich war. Die Komponenten des Aufbaus waren über ein Schienensystem fest mit dem Untergrund verbunden und hier wurde eine möglichst dicke Edelstahlplatte eingesetzt um Schwingungen zu reduzieren. Vermutlich haben sich die Erschütterungen maßgeblich auf die Position der Messerblende ausgewirkt, so dass keine Kontrastunterschiede von Medien unterschiedlicher Dichte festgestellt werden konnten.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass das Experiment an sich funktioniert hat, allerdings sind Parabelflüge nicht die richtige Plattform für Untersuchungen mit diesem Aufbau. Die Erschütterungen und Vibrationen im Flugzeug konnten zuvor nicht getestet bzw. simuliert werden. Leider hat die Kampagne keine auswertbaren Daten hinsichtlich der eigentlichen Fragestellung im Vorhaben ergeben.

Wichtigste Erkenntnisse aus den Parabelflug- und Bodenexperimenten

Um trotz der oben genannten Schwierigkeiten eine Auswertung der Bilddaten vornehmen zu können wurden die Einzelbilder der Basler-Kamera zu Videos transformiert. Aufgrund der oben beschriebenen Vibrationen und Erschütterungen mussten die Videos anschließend mithilfe von Software stabilisiert werden. Dabei wurden folgende Beobachtungen gemacht und Erkenntnisse getroffen:

- Unabhängig von der Orientierung der Probe und damit der Wachstumsrichtung des Kristalls in Bezug auf den g-Vektor unterliegt die Phasenfront einem Wechsel ihrer Form. Unabhängig von der An- oder Abwesenheit von Schwerkraft und der Richtung ihrer Wirkung startet die Phasenfront in konvexer Krümmung und wechselt im Experimentverlauf auf Zellenmittenhöhe hin zu konkaver Krümmung. Das zeigt, dass die Probentiefe mit 1mm schmal genug ist, um Auftriebskonvektion soweit zu unterdrücken, dass sie keine Auswirkung auf die Ausbildung der Phasengrenzform hat. Somit kann dieses System für einen direkten Vergleich zwischen Normalbedingungen und Mikrogravitationsbedingungen hergenommen werden.
- Besonders am dritten Flugtag, als die Mischung der Partikelsorten eingesetzt wurde, war auffällig, dass die Oberflächeneigenschaften der Partikel einen untergeordneten bis keinen Einfluss auf das Einfang- bzw. Einbauverhalten haben. Sowohl die beschichteten als auch die unbeschichteten Partikel neigen dazu im Bereich der konvex geformten Phasenfront eingebaut zu werden, während sie von der konkaven Front eher geschoben werden. Das zeigt, dass der Partikeleinfang unabhängig von den Wärmeleitfähigkeitsparametern der Oberfläche ist.
- Eine weitere Beobachtung, die sowohl im Labor als auch während der Parabelflugexperimente gemacht wurde, ist dass vor allem im konkav geformten Bereich der Phasenfront bei Auftreffen eines Partikels im Kontaktpunkt Gasblasen entstehen. Diese Gasblasen sind vermutlich Luftblasen, d.h. dass im Wasser oder im Eis gelöste Luft an diesem Punkt ausgasen. Die Henry-Konstante bzw. der Henry-Koeffizient, da er einer Temperaturabhängigkeit unterliegt, besagt, dass die Löslichkeit von Gasen in Wasser bei höheren Temperaturen abnimmt [Hen 03]. Die geometrische Situation der konkav geformten Phasengrenze unterhalb der relativ großen Partikel, die im Volumen materialspezifisch eine geringe Wärmeleitfähigkeit aufweisen, scheint einen Wärmestau zu verursachen, der die Löslichkeit von Gas in Wasser so massiv herabsetzt, dass sich an Ort und Stelle Gasblasen bilden. Diese Gasblasen führen zu einem Schieben der Partikel, da sie in Präsenz einer Blase nicht direkt von der Phasenfront eingefangen werden können. Dies könnte auch die Erklärung für den vorangegangenen Punkt darstellen.

- Entgegen der Erkenntnisse aus dem InSituKris-Vorhaben und den Voraussagen der theoretischen Modelle neigen die Partikel in den Experimenten des VIPer-Vorhabens eher dazu bei niedrigeren Wachstumsgeschwindigkeiten eingebaut zu werden und bei höheren geschoben zu werden. Dieses Verhalten kann basierend auf den bestehenden theoretischen Modellen nicht abschließend erklärt werden.
- Eine vage Beobachtung aus dem InSituKris-Vorhaben konnte im Rahmen der VIPer-Experimente verifiziert werden. Kurz bevor die Phasenfront auf einen Partikel trifft, bildet sich unterhalb des Partikels bereits eine Vertiefung („Dip“) aus. Auch dieses Verhalten spricht für lokal Veränderungen der thermischen Verhältnisse, die durch das Anstauen von Kristallisationswärme erklärbar sind.
- Sobald ein Partikel eingefangen und eingebaut ist entsteht oberhalb des Partikels ein gut sichtbarer Kanal, der sich über eine Länge von teilweise mehreren Millimetern erstrecken kann. Irgendwann endet der Kanal, was die Ausbildung dessen aber beendet, konnte im Laufe des Vorhabens nicht geklärt werden.

Diese Beobachtungen liefern nichtsdestotrotz Parameter, die in die theoretischen Modelle eingepflegt werden können und damit diese weiterhin optimieren.

2.1.4 Vorbereitung, Durchführung und Auswertung des Flugexperiments auf TEXUS 58

Im Rahmen einer Ausschreibung der ESA (European Space Agency) wurde der VIPer-Experiment-Vorschlag von der zuständigen Auswahlkommission mit „outstanding“ begutachtet und als Prime Kandidat für die Teilnahme an der ESA-TEXUS-Mission 58 ausgewählt. Aufgrund dieser Auswahl wurde das VIPer-Vorhaben vom DLR/BMWi (BMWK) als nationales Projekt gefördert und finanziert.

Wie bereits im InSituKris-Vorhaben wurde auch hier für das TEXUS-Flugexperiment das Experimentmodul TEM 06-23 verwendet. Die Wiederverwendung des Moduls gewährleistet eine direkte Vergleichbarkeit der Experimente und der daraus gewonnenen Erkenntnisse. Aus diesem Grund wurde auch das zuvor erfolgreich eingesetzte Material H_2O als Modellschmelze in Kombination mit Polystyrol-Partikeln für die Versuche verwendet. Die Experimentzelle in diesem Modul ist eine Kopie der Zelle, die auch während der Parabelflüge eingesetzt wurde. Die Vortests zu diesem Flugexperiment fanden aber direkt im TEXUS-Flugmodul, im folgenden FM abgekürzt, in insgesamt 3 Experimentreihen bei Airbus D&S in Trauen statt.

Im Folgenden wird kurz das FM vorgestellt bevor detaillierter auf die Ergebnisse der Vorversuche eingegangen werden soll. Im Anschluss daran werden das Flugexperiment und der aktuelle Stand der Auswertung vorgestellt.

Flugmodul TEM-06-23

Für das Flugexperiment auf TEXUS wurde der Aufbau des Airbus Moduls TEM 06-23 eingesetzt. Abbildung 2.27 zeigt schematisch den Aufbau des gesamten Experimentmoduls.

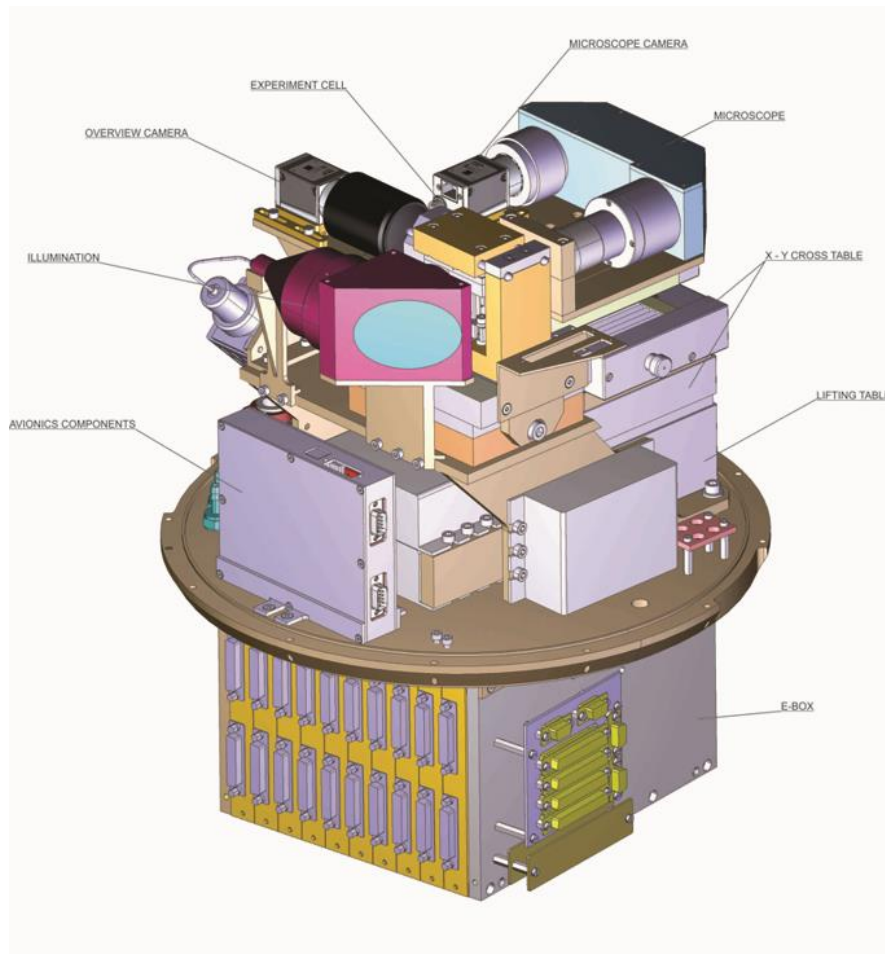


Abb. 2.27: Aufbau des Flugmoduls TEM 06-23, wie es für das Flugexperiment im VIPer-Vorhaben auf TEXUS 58 eingesetzt wurde.

Abbildung 2.28 zeigt nochmal den schematischen Aufbau der Experimentzelle im FM. Die Darstellung ist dem Abschlussbericht unseres Verbundpartners zum Vorhaben InSituKris entnommen, der dieses Modell für die angehängten Simulationsrechnungen erstellt und verwendet hat. In der Mitte der Darstellung ist die transparente Probenkammer zu erkennen. Für die Beobachtung der Vorgänge im Innern der Probe sind 2 transparente Kunststofffenster eingesetzt. Hinter der Bildebene ist eine Lichtquelle angebracht, vor der Bildebene ein Kamerasystem bestehend aus 2 Kameras. Eine der beiden Kameras liefert ein Übersichtsbild über die gesamte Probenfläche, die andere Kamera kann mit ca. 10-facher Vergrößerung Ausschnitte der Probe darstellen. Die Kamera ist auf einem x-z-Tisch montiert und kann somit über die gesamte Probenfläche verfahren werden. Zudem kann die Kamera ihren Fokus in jeder Ebene der Ausdehnung der Probe in y-Richtung scharfstellen. In Abb. 2.28 liegt die y-Richtung senkrecht zur Bildebene, x verläuft horizontal und z vertikal.

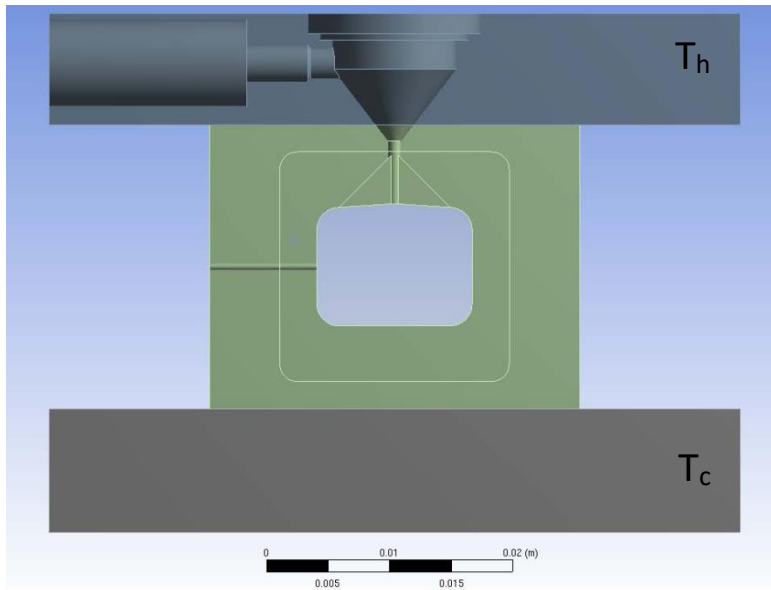


Abb. 2.28: Schematische Darstellung der Experiment-Zelle im FM.

Oberhalb der Zelle ist ein weiterer, trichterförmiger Behälter zu erkennen. Dies ist der Überlaufbehälter, der wiederum sicherstellt, dass während der Erstarrungs- bzw. Schmelzprozesse, die Probenkammer immer gasfrei mit Schmelze gefüllt ist. Im Ganzen befindet sich die Schmelze in einem Kreislauf, angetrieben durch eine Peristaltik-Pumpe. Dies ist notwendig, damit im Flugversuch, nach Erreichen der Mikrogravitation, die Partikel in die Probenkammer eingespült werden können. Wären die Partikel schon zu Beginn in der Probenkammer, würden sie in der Phase des Starts (dabei herrschen Kräfte bis zu 17g zum Probenboden hin gerichtet) auf die Phasengrenze des bereits wachsenden Kristalls absinken und sofort eingebaut werden. Damit würden sie für den eigentlichen Versuch unter μg nicht mehr zur Verfügung stehen. Im Zentrum der Probenkammer ist der Zulauf zu sehen, der Austritt der Schmelze erfolgt über den Trichter. Über die angeschlossene Peristaltik-Pumpe ist der Kreislauf dann geschlossen. Unterhalb und oberhalb der Zelle ist in Abb. 2.28 jeweils ein grauer, rechteckiger Bereich eingezeichnet. Diese Bereiche, benannt T_h und T_c , sind die Peltierelemente für die Temperatursteuerung in der Probenkammer. Dabei steht T_h für das obere Element, da hier im Experiment die höheren Temperaturen anliegen, T_c dagegen für die untere, kältere Seite. Das Ziel ist hierbei die Einstellung eines homogenen Temperaturgradienten entlang der vertikalen Probenachse (|| zur z-Richtung). Abbildung 2.29 zeigt schematisch den Experimentaufbau innerhalb der Zelle, inkl. der Probenabmessungen und der Richtung des T-Gradienten.

Die gesamte Kammer des TEM 06-23-Moduls muss zur Vermeidung von Kondensation der Luftfeuchtigkeit während des Züchtungsprozesses evakuiert werden bzw. in trockener Atmosphäre betrieben werden. Dies wurde bereits in den Erläuterungen zum Parabelflugmodul behandelt.

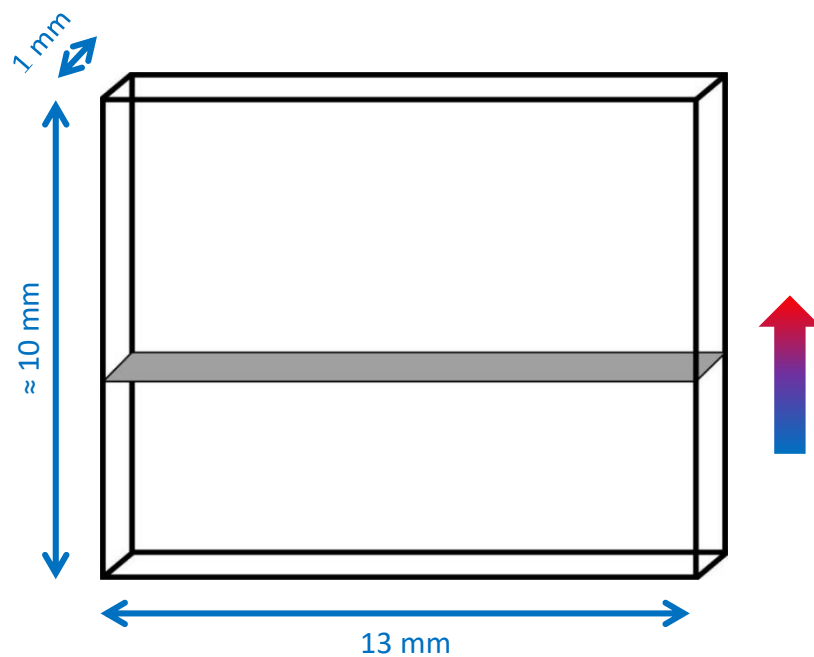


Abb. 2.29: Schematische Darstellung der Probe im FM, inkl. Probenabmessungen und Richtung des anliegenden T-Gradienten.

Im Verlauf des Versuchs sollte eine kontinuierliche Änderung der Wachstumsgeschwindigkeit (v_{Gr}) bzw. Verschiebegeschwindigkeiten der fest-flüssig Phasengrenze erzwungen werden. Dazu wurde die Trägheit des Systems ausgenutzt indem zunächst eine geringe v_{Gr} eingestellt und stabilisiert wurde und anschließend eine hohe v_{Gr} . Aufgrund der Trägheit des Systems erhöht sich v_{Gr} nicht im selben Maße, sondern steigt langsam und stetig an. Im Speziellen war die Einstellung der gewünschten v_{Gr} Bestandteil der Vorversuche am Flugmodul. Da diese Einstellungen auch sehr abhängig vom Setup selbst sind, mussten die Vorversuche unbedingt im FM selbst stattfinden.

Wie bereits oben erwähnt, ist die Darstellung einer planaren Phasengrenze elementar wichtig um das Vorhabenziel zu erreichen. In Kapitel 1 und in der Vorhabenbeschreibung zu diesem Projekt wurde die Aufgabenstellung detailliert beschrieben. Ein wichtiger Arbeitspunkt in diesem Vorhaben ist die reale Darstellung eines bereits ansatzweise modellierten Bezugssystems. In diesem System wurden auftretende Kräfte gegengerechnet, allerdings immer unter der Annahme relativ einfacher Randbedingungen. Zum Beispiel wurden als Partikel immer perfekt sphärische Körper mit isometrischen Eigenschaften angenommen und eine absolut planare und parallelverschiebbare PG. Um nun das theoretische Modell zu evaluieren, musste das Experiment diesen Bedingungen angepasst werden. Abbildung 2.30 zeigt die sehr gute Übereinstimmung von Modell und diesem Experiment.

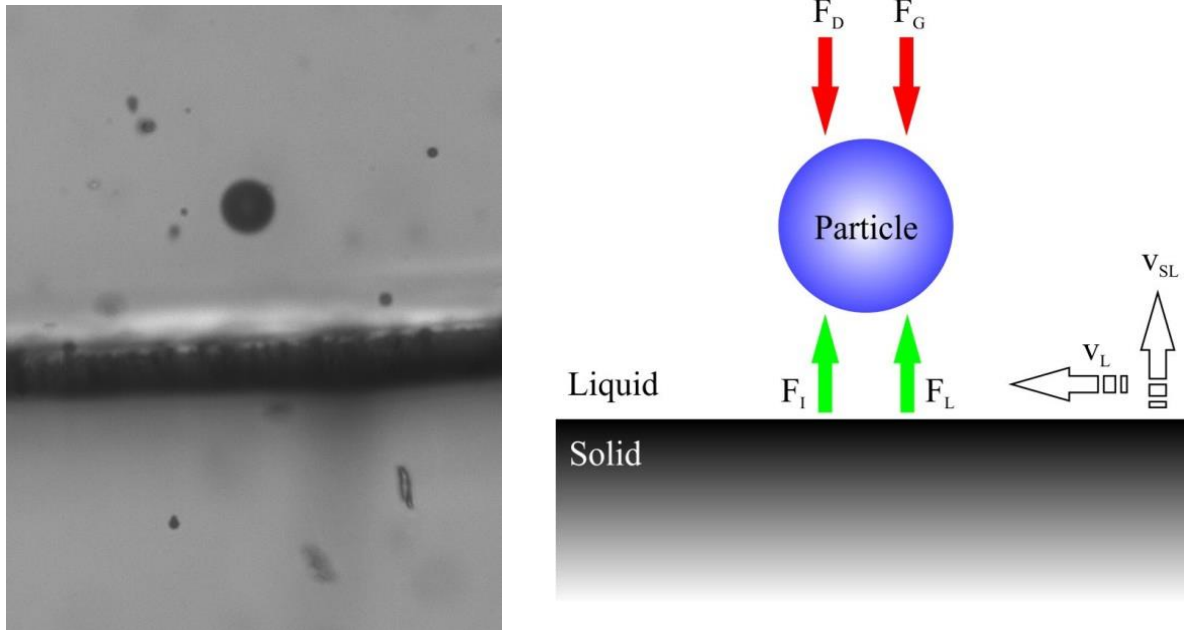


Abb. 2.30: links: Screenshot eines Bodenversuchs im FM, rechts: schematische Darstellung des theoretischen Modells mit den wirkenden Kräften

Im linken Teil der Abb. 2.30 ist eine Aufnahme aus einem Bodenversuch im FM zu sehen. Die annähernd horizontale, dunkle Linie stellt die PG zwischen Eis (unten) und Wasser (oben) dar. Leider stellt sich diese Linie als relativ dick dar, was der Tatsache geschuldet ist, dass sich das Eis an dem Fenstermaterial leicht nach oben zieht. Dies erschwert die direkte Beobachtung der Wechselwirkung zwischen Phasengrenze und Partikel direkt vor, während und direkt nach dem Einfang des Partikels. Deshalb wurden für das VIPer-Experiment vorwiegend Partikel großen Durchmessers (300µm und 500µm) eingesetzt.

Im rechten Teil der Abb. 2.30 ist die Darstellung des zugrundeliegenden Modells zu sehen. Die wesentlichen Merkmale, wie eine planare PG, sphärische Partikel, schwebende Partikel, können im Experiment sehr gut abgebildet werden.

Vorversuche zu Flugexperiment auf TEXUS 56

Die bereits oben erwähnten Vorversuche für das VIPer-TEXUS-Experiments fanden im Zeitraum Juli 2022 bis Januar 2023 bei insgesamt 3 Aufenthalten bei Airbus D&S in Oyten statt. Die für die Parabelflüge eingesetzte Experimentzelle wurde direkt nach der Parabelflugkampagne an Airbus zurückgeschickt, damit diese refurbished werden kann und bei unserem Besuch in Oyten für den Einsatz im TEM 06-23 Modul vorbereitet ist.

Da die Bedienung des Moduls im Wesentlichen unverändert im Vergleich zum Flugexperiment auf TEXUS 56 geblieben ist, lagen die Hauptaugenmerke der Vorversuche in folgenden Punkten:

Positionsbestimmung der Phasengrenze

Die ideale Höhe der Phasengrenzschicht vor Lift-off bzw. vor Experimentstart musste bestimmt werden, damit in den 6 Minuten Mikrogravitation die Partikel zum einen möglichst dicht oberhalb der

Phasengrenze eingespült werden, die Einspülöffnung aber nicht von Eis verschlossen ist. Ist die Phasengrenze zu weit unterhalb der Einspülöffnung positioniert, dann ist nicht gewährleistet, dass sie im Experimentverlauf die Partikel überhaupt erreicht. Ist sie zu hoch, können die Partikel den Vorratsraum nicht mehr verlassen und können nicht ins Innere der Zelle gelangen. Aus dem InSituKris-Flugexperiment ist bekannt, wo sich die Partikel nach dem Einspülen innerhalb der Zelle positionieren. Dies kann unter Normalbedingungen nicht bestimmt werden, da sowohl die Schwereseigerung und die dort auftretende Auftriebskonvektion ein anderes Einspülbild ergeben als unter Schwerelosigkeit. Abbildung 2.31 zeigt verschiedene Positionen der Phasengrenze innerhalb der Zelle. Im ersten Schema (A) ist die Phasengrenze zu niedrig positioniert, so dass die Phasengrenze die Partikel, die erfahrungsgemäß oberhalb der Einspülöffnung (mittig auf der linken Zellenseite zu sehen) zum Liegen kommen, in den 6 Minuten Kristallwachstum unter μg nicht erreicht würde. Im zweiten Schema (B) liegt die Phasengrenze oberhalb der Einspülöffnung, so dass der Eingang bereits verschlossen wäre und ein Eintreten der Partikel damit unmöglich. Im dritten, unteren Schema (C) ist die optimale Position der Phasengrenze dargestellt. Hier könnten die Partikel ungehindert eingespült werden ohne zu stark an der Kristalloberfläche abzuprallen und damit nach oben abgelenkt zu werden, aber die Phasengrenze erreicht die Partikel bereits kurz nach dem Einspülvorgang.

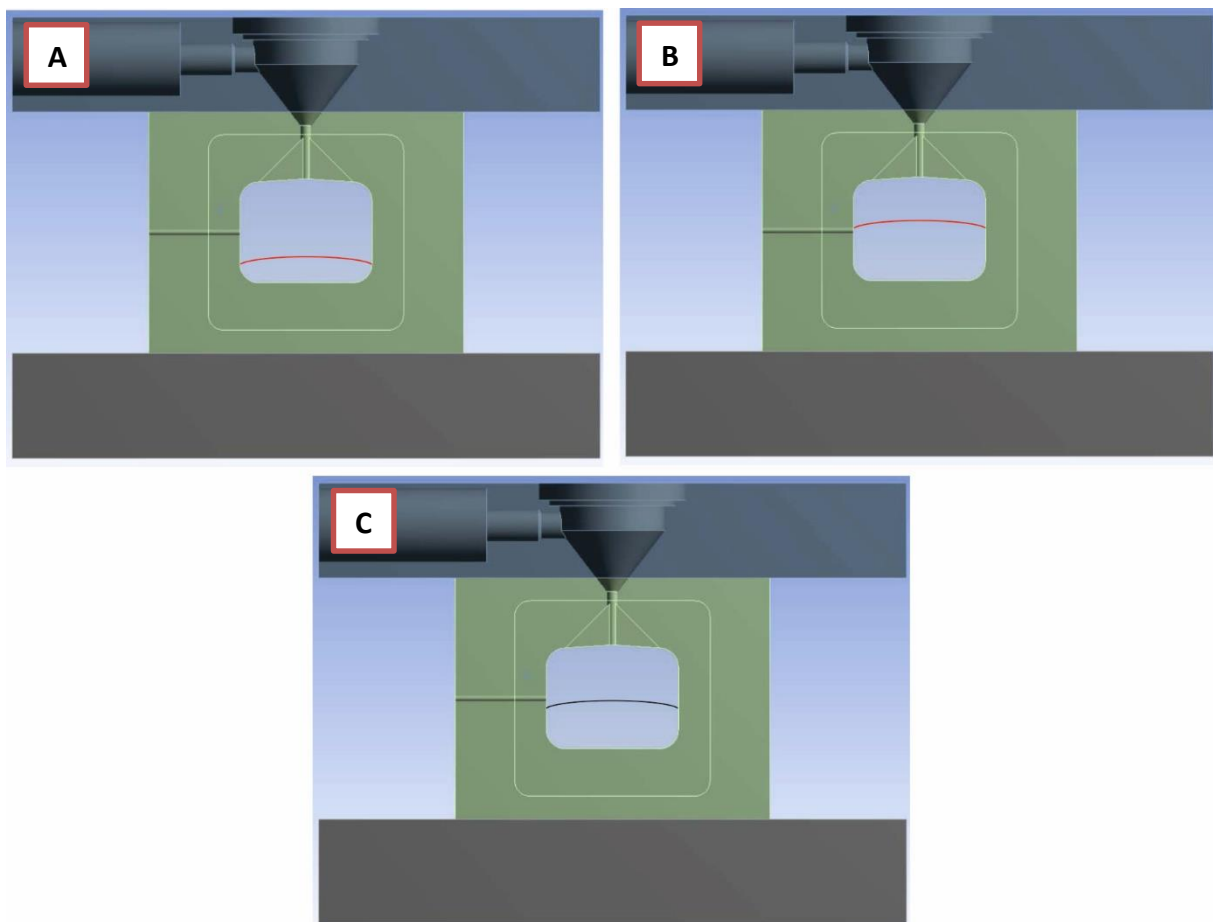


Abb. 2.31: Darstellung verschiedener, optionaler Positionen der Phasengrenze innerhalb der Zelle. Bei Experimentbeginn, bzw. bei Eintritt in die Schwerelosigkeit, soll die Phasengrenze möglichst nahe der Position in Schema (C) sein, da hier ein ungehindertes Einspülen der Partikel möglich ist und diese anschließend schnell von der Wachstumsfront erreicht werden. Schemata (A) und (B) zeigen je zu niedrige und zu hohe Positionen der Phasengrenze zu Experimentstart, die beide eine erfolgreiche Durchführung des Experiments verhindern würden.

Ziel der Vorversuche war die Bestimmung und Festlegung der Parameter, die die Phasengrenze in einer definierten Position unterhalb der Einspülöffnung stabil hält, so dass im Countdown vor Lift-Off das Kristallwachstum kontrolliert gestartet werden kann und oben genannte Anforderungen bei Eintritt in μg gewährleistet sind.

Bestimmung der maximalen Wachstumsgeschwindigkeit $v_{\text{Gr}}(\text{max})$

Um im Experimentverlauf möglichst viele Partikel in Kontakt mit der Phasengrenze zu bringen und damit eine maximale Menge an Daten zu sammeln, sollte zudem die höchstmögliche v_{Gr} bestimmt werden, bei der die Stabilität der planaren Wachstums aber immer noch gewährleistet ist. Ein Zusammenbrechen der Phasengrenze musste unbedingt vermieden werden, da die zu untersuchende Wechselwirkung zwischen Phasengrenze und Partikel nur bei planarer Wachstumsfront möglich ist. Die v_{Gr} musste empirisch festgestellt werden und die Reproduzierbarkeit über eine Vielzahl an Durchläufen bestätigt werden. Im Rahmen dieser Vortests mit verschiedenen Rampen stellte sich heraus, dass eine Rampe von 0,5 K/min eine weitgehend stabile Phasengrenzschicht gewährleistet, aber gleichzeitig auch schnell genug ist um eine möglichst große Anzahl an freischwebenden Partikeln zu erreichen. Im Folgenden wird diese v_{Gr} als $v_{\text{Gr}}(\text{max})$ bezeichnet. Die Auswertung der wichtigsten Daten ist in Abbildung 2.32 dargestellt.

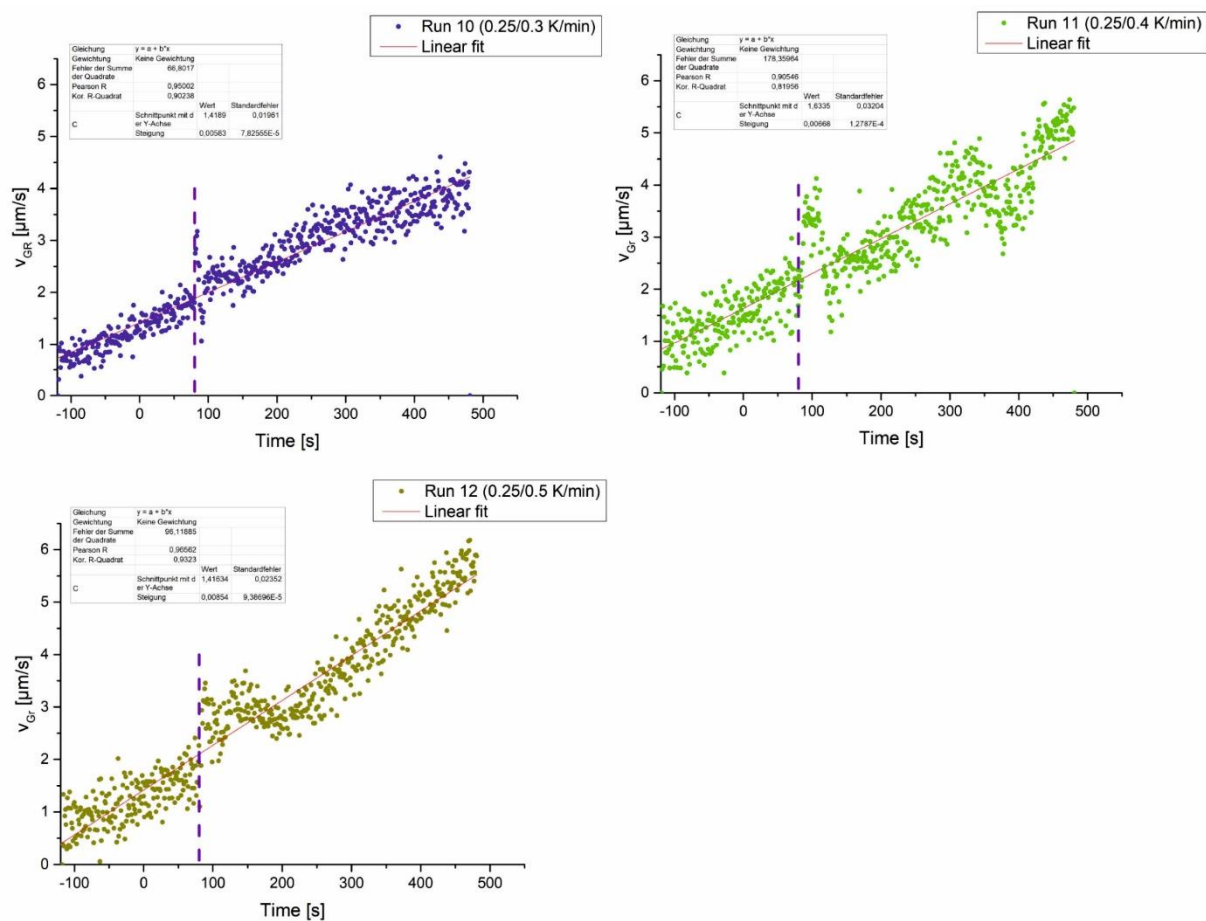


Abb. 2.32: Auswertung der verschiedenen Verläufe von v_{Gr} bei Anwendung verschiedener Abkühlrampen, oben 0,25 & 0,3 K/min, Mitte 0,25 & 0,4 K/min, unten 0,25 & 0,5 K/min.

Die ausgewerteten Verschiebegeschwindigkeiten der Vorversuche im FM zeigen, dass über die gesamte Experimentdauer eine stetige Zunahme von v_{Gr} erfolgt, ein Plateau wird in keinem der untersuchten Fälle erreicht. Die Steigung der v_{Gr} -Kurve ist allein abhängig von der angelegten Rampe und ändert sich über einen Zeitraum von 10 Minuten nicht. In den Vorversuchen wurde der Einfluss des Einspülens der Partikel, wie es im realen Experiment erfolgen wird, allerdings nicht berücksichtigt, da hier die reine v_{Gr} bestimmt werden sollte. Da Einspüldauer und Anzahl an transportierten Partikel vorher nicht bekannt ist, wurde dieser Faktor in der Bestimmung der v_{Gr} vernachlässigt. Wie bereits oben erwähnt, wurde die Rampe mit zunächst 0,25 K/min und einem Umschalten auf 0,5 K/min (3. Diagramm in Abb. 2.32) für den Flugversuch festgelegt.

Sicherstellen des störungsfreien Einspülens der Partikel in die Experimentenzelle

Da für das VIPer-Experiment deutlich größere Partikel eingesetzt werden als in allen vorangegangenen Versuchen, mussten seitens Airbus D&S geringfügige strukturelle Änderungen an der Experimentenzelle durchgeführt werden. Zum einen wurde der Durchmesser der Einspülöffnung vergrößert, zum anderen wurde die Zuleitung versteift und statt eines Silikonschlauchs ein Edelstahlrohr eingesetzt. Dies soll die statische Anhaftung der Partikel an der Innenwand der Zuleitung möglichst geringhalten. Allerdings erschwert das nicht transparente Edelstahlrohr die Experimentvorbereitung dahingehend, dass die Positionierung der Partikel vor der Einspülöffnung, da man keine Sichtprüfung zu Anzahl und Position der Partikel durchführen kann, quasi blind erfolgt. Nach anfänglichen Schwierigkeiten beim Einspülen der Partikel wurden von Airbus D&S im Verlauf der Vorversuche mehrere Umbauten am Einspülmechanismus der Zelle vorgenommen und schließlich konnte ein zuverlässiges Einspülen erfolgreich und reproduzierbar gewährleistet werden.

Befüllen der Experimentenzelle mit Wasser und Partikeln

Aufgrund der strukturellen Anpassungen der Experimentenzelle musste das Befüllen der Zelle mit deionisiertem (18 M Ω) Wasser und den Partikeln neu aufgesetzt werden. Besonders wichtig beim Befüllen ist, dass keine Luft bzw. kein Gas in die Zelle kommt und dort Blasen bildet. Vorhandene Gas- und Luftblasen bergen mehrere Probleme:

- An der Grenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit entsteht eine freie Grenzfläche und damit oberflächenspannungsgetriebene Marangoni-Konvektion im Fluid. Diese wirkt genauso unter μ g-Bedingungen und würde das Experiment massiv stören.
- Gasblasen können nur schwer gepumpt werden und stellen unter Umständen ein unüberwindbares Hindernis für die Partikel beim Eintritt in die Zelle dar.
- Gasblasen heften sich bevorzugt an die Scheiben der Experimentenzelle an und je nach Größe der Blase berührt sie gleichzeitig beide Scheiben und erstreckt sich so über die gesamte Tiefe der Zelle. Auch das stellt sowohl optisch als auch mechanisch eine große Störung im Experimentablauf dar.
- Aufgrund der verschiedenen thermischen Eigenschaften von Gas/Luft und dem Fluid können unerwartete und unkontrollierbare thermische Gradienten auftreten, die das Wachstum des Kristalls stark beeinflussen können.

Um die Bildung störender Blasen zu vermeiden wurde der Vorgang des Befüllens der Zelle und der Vorbehandlung (Entgasen) des Wassers erfolgreich optimiert.

Krümmung der Phasengrenzschicht

Um auch die Blasenbildung zwischen Partikeln und einer konkav gekrümmten Phasengrenze zu vermeiden, wurde sichergestellt, dass die Phasengrenzschicht während der 6-minütigen, „heißen“ Experimentphase eine konvexe oder planare Form aufweist.

Übung zur Routine in der Experimentsteuerung

Weitere Testläufe wurden durchgeführt, um die Operatoren an die Handhabung der Steuerung der Peltier-Elemente, des Einspülmechanismus und der Kamera zu trainieren.

Die untenstehende Abbildung 2.33 zeigt exemplarisch ein Detailbild aus einem Vorversuch zur Herstellung einer stabilen Phasenfront ohne Zugabe von Partikeln. Mittig im Bild ist die horizontale Phasengrenze zu erkennen, unterhalb befindet sich das kristallisierte Eis, darüber das flüssige Wasser.

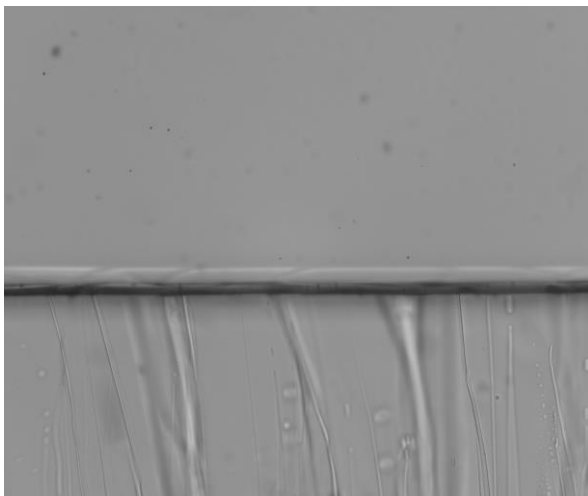


*Abb. 2.33:
Detailbild der Experimentzelle im Modul TEM 06-23 mit H₂O
als Modellschmelze (ohne Partikel)*

Um für die Durchführung der Bodenversuche möglichst nahe an die Bedingungen des Flugversuchs zu kommen, wurden die Experimente im FM nicht in aufrechter Position des Moduls durchgeführt, sondern das gesamte Modul wurde um 90° gekippt, so dass die Erdanziehung in y-Richtung wirkt (s. Abb. 2.34). Hier wird der Ansatz aus den Parabelflügen wieder aufgegriffen und damit das direkte Absinken der Partikel nach dem Einspülen hin zur Phasengrenze verhindert. In dieser Orientierung liegen die Partikel zwar auf der hinteren Fensterscheibe der Probenkammer auf, aber es wirken keine gravitativen Kräfte senkrecht zur PG.

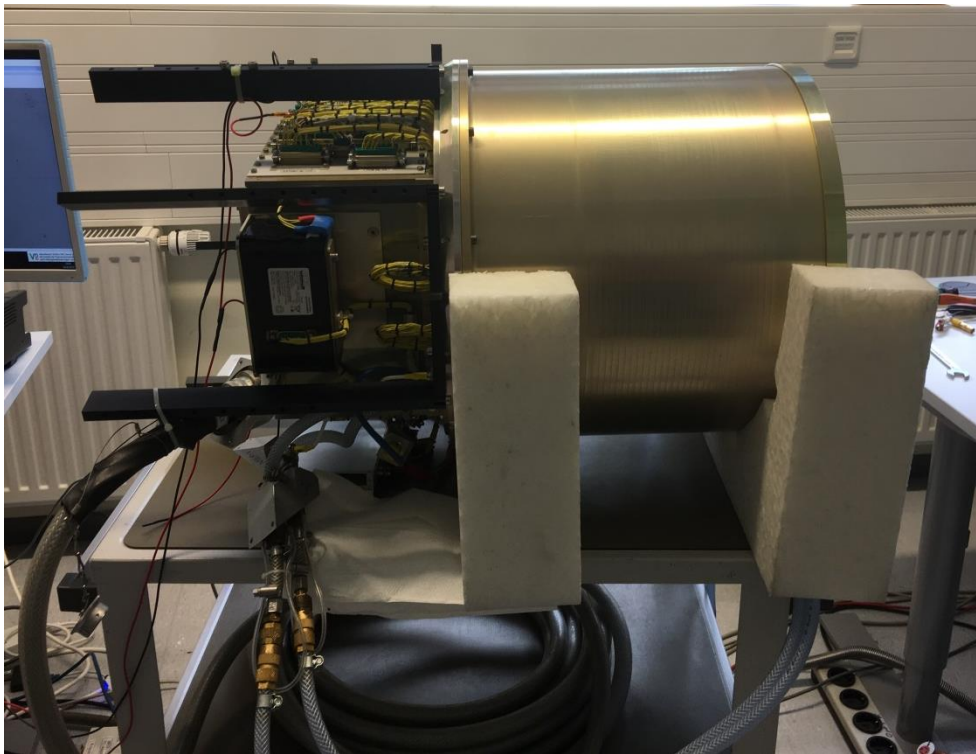


Abb. 2.34: TEM 06-23 Modul während der Bodenexperimente bei Airbus D&S in Oyten. Das FM wurde für die Versuche in eine horizontale Position gedreht, dass die Gravitation senkrecht zur Bildebene wirkt.

Das Team aus Freiburg, bestehend aus Philipp Ott und Dr. Tina Sorgenfrei, reiste im April 2023 nach Esrange, Kiruna, Schweden um die Arbeiten zur Flugvorbereitung am Modul durchzuführen. Unterstützend war aus dem Freiburg Team auch Dr. Thomas Jauß vor Ort, der eigentlich für ein anderes Projekt und Experiment auf der zweiten Rakete der Doppelkampagne, TEXUS 59, angereist war. Am 24.04.2023 startete die TEXUS 58-Rakete bei guten Bedingungen.

In den Vorversuchen wurden, wie oben erwähnt, die Parameter für den Flugversuch festgelegt. Tabelle 2.5 zeigt die erarbeitete und angewendete Timeline. Für den Versuch wurde eine stabile v_{Gr} über eine Rampe von 0,25 K/min wenige Minuten vor Lift-Off eingestellt und anschließend unter μg auf 0,5 K/min erhöht. Die v_{Gr} wird im Experiment über eine Temperaturrampe eingestellt. Während ein konstanter Temperaturgradient zwischen T_h und T_c , d.h. zwischen dem oberen und dem unteren Peltierelement, anliegt, stellt sich hier nach einiger Zeit ein Gleichgewicht ein. Die PG befindet sich dabei immer am Ort der Kristallisationstemperatur. Diese wurde für das System nicht im Detail bestimmt, da sie für das Experiment selbst nicht relevant ist. Da es sich bei dem eingesetzten Material um reines Wasser ohne Zusatzstoffe handelt, wird der Kristallisationspunkt bei ca. 0°C angenommen.

Tabelle 2.5: Timeline zum Flugexperiment auf TEXUS 58 im April 2023

Step no.	Description	Time rel. to lift-off
1	Evacuation module down to 200 mbar, Ar purging	- 4h
2	Set cooler at +3°C	
3	Wait until CP below +10°C	
4	Set T_h on 0°C and T_k on -10°C	
5	Wait for visible crystallization (approx. -7°C)	
6	Set initial gradient T_h +7°C, T_k -3,5°C	
7	Wait for achievement gradient, growth front below axial center?	
8	Set T_h and T_k on minimum values and ramp on 0K/min	ca. -30:00 min
9	Set ramp on 0.25 K/min	- 120s
10	Lift-Off	0
11	Start μg / Start inserting particles	+ 66s
12	Set ramp on 0.5 K/min	+ 80s
13	End μg	+ 441s

Die Timeline bezieht sich mit den angegebenen Zeiten in der Spalte „Time / rel. to lift-off“ auf den Zeitpunkt vor (-) oder nach (+) dem Lift-Off der Rakete. Die Schritte 1-7 sind nicht zeitkritisch, sie müssen lediglich ca. 10 min vor dem Raketenstart abgearbeitet sein, das System kann in diesem Zustand aber mehrere Stunden stehen. Im Wesentlichen beinhalten diese Schritte die Vorbereitung des Kühlsystems der Peltierelemente um die Probe, die im flüssigen Zustand in die Nutzlast eingesetzt wird, komplett erstarren zu lassen (Schritte 1-5). Wenn die Probe komplett durchkristallisiert ist (passiert sehr schlagartig) werden im folgenden Schritt die Leistungswerte der Peltierelemente auf die zuvor festgelegten Werte gefahren, dass das Eis langsam von oben nach unten hin zurückschmilzt (Schritt 7). Dieser Prozess wird so lange durchgeführt, bis nur noch eine kleinere „Eisscholle“ am unteren Ende der Probenkammer vorhanden ist, diese aber noch fest mit dem Boden verbunden ist. Anschließend werden in Schritt 8 neue, ebenfalls zuvor festgelegte Leistungswerte der Peltierelemente eingestellt, die eine Verschiebung der Eis-Wasser-Grenzfläche nach oben zulassen. Hier wird dann der erste Teil des transparenten Eiskristalls erstarrt. Dagegen ist das schnell erstarrte Eis mehrheitlich intransparent. Aufgrund der zuvor festgelegten Leistungswerte der Peltierelemente bewegt sich die Phasengrenze auf die in den Vorversuchen festgelegte Höhe der Probenkammer und kommt dort zum Stillstand.

Zwei Minuten vor dem Start wird das sich im thermischen Gleichgewicht befindliche System wieder mobilisiert. Dazu wird die erste Rampe mit einer Abkühlrate von 0,25 K/min geschaltet. Diese Rampe bedeutet, dass T_h und T_c parallel ihre Leistung verändern und die Temperatur oben und unten in gleichem Maße verringert wird. Damit wird das System aus dem thermodynamischen Gleichgewicht gebracht und das Kristallwachstum beginnt. Nach Überwinden der systemischen Trägheit beginnt der Kristall wieder zu wachsen. Bis zum Lift-off hat der Kristall eine stabile Wachstumsgeschwindigkeit und wächst auch über den Start bis zum Eintritt in μg ungestört weiter. Ab diesem Schritt wäre eine Verzögerung des Starts, ein sog. Hold, ein großes Problem, da das Kristallwachstum stetig voranschreitet. Ginge ein Hold über einen Zeitraum von mehr als 2 Minuten hinaus, hätte das einen Startabbruch bzw. ein Zurückgehen im allgemeinen Startcountdown auf T -30 min zur Folge und ein Zurückspringen auf Schritt 1. Glücklicherweise, traf dieses Szenario bei TEXUS 58 nicht ein.

Bei Eintritt μg , also bei ungefähr +70s, werden die Partikel durch manuelles Betätigen der Pumpe eingespült. Dies führt zu einer Wachstumsstörung bzw. einem kurzzeitigen Rückschmelzen des Kristalls, da das einströmende Wasser etwas wärmer ist als das Wasser in der Zelle. Die Abbildung 2.35 zeigt einen Screenshot aus genau dieser Startphase des Flugexperiments auf TEXUS 58. Die Aufnahme wurde bei $t = +72\text{s}$ gemacht und zeigt die Positionen der Partikel direkt nach dem Einspülen. Die Phasengrenze auf der rechten Kristallseite liegt etwas tiefer, das ist das Resultat des kurzen Rückschmelzens. Empirische Versuche im Vorfeld liefern die Erkenntnis, dass diese kurzzeitige Störung des Wachstums keinen Einfluss auf den Verlauf des Experiments hat. Die Position der Phasengrenze erholt sich relativ schnell ohne dass die Wachstumsfront zusammenbrechen würde. Bei den gelb markierten Partikeln handelt es sich um beschichtete Partikel, die unmarkierten sind blanke, blaue Polystyrol-Partikel.

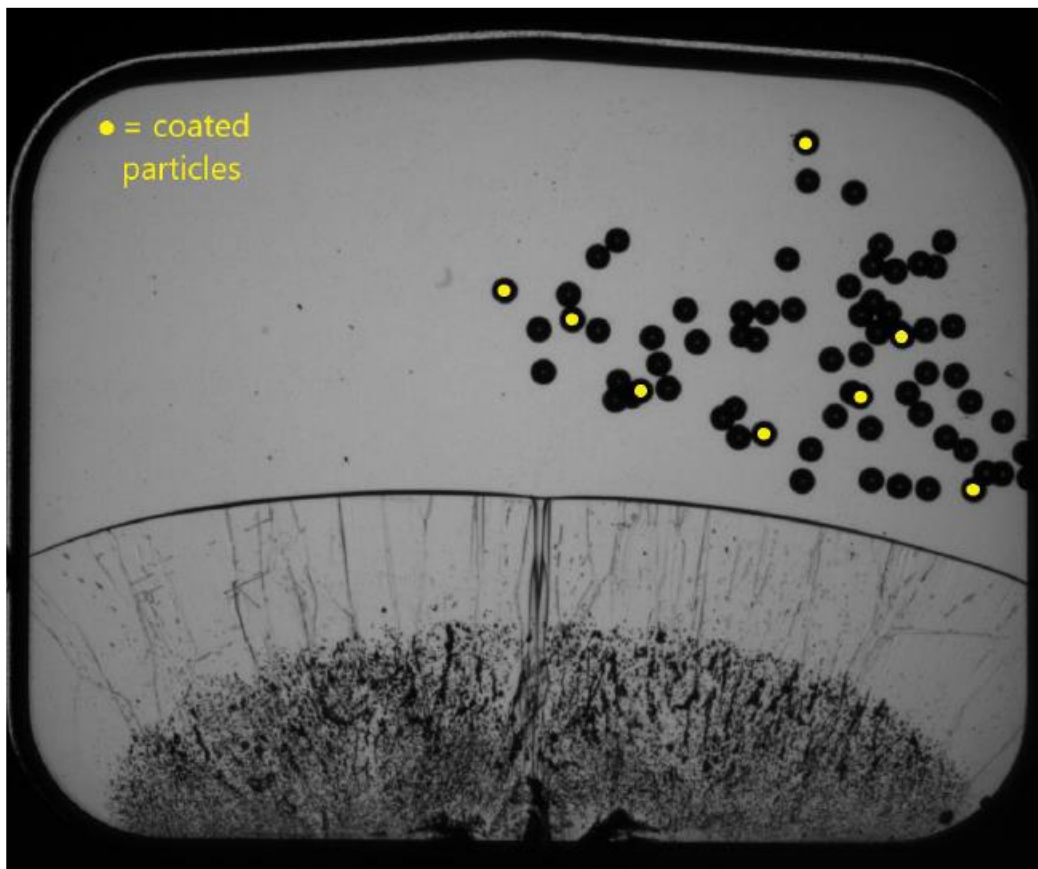


Abb. 2.35: Screenshot aus dem VIPer-Flugexperiment auf TEXUS 58 direkt nach Eintritt in μg bei +72s

Für das Flugexperiment wurden 4 Partikelsorten injiziert:

- PS 300 (blau)
- PS 300 (gold)
- PS 500 (blau)
- PS 500 (gold)

Aus Gründen, die wir bis dato nicht klären können, wurden ausschließlich Partikel der Größe $300\mu\text{m}$ in die Zelle eingespült. Es befinden sich etwas mehr blaue als goldene Partikel darin, aber beide Sorten der $300\mu\text{m}$ -Partikel sind vertreten. Von den $500\mu\text{m}$ -Partikeln wurde, trotz mehrfachem Pumpen, kein einziger in die Zelle befördert. Da ein weiteres Pumpen aber die Gefahr barg, dass die vorhandenen

Partikel durch das durchströmende Wasser weiter nach oben gedrückt werden, wurde beschlossen mit der vorhandenen Partikelsituation weiter zu verfahren. Die Verteilung der Partikel im Fluid ist erwartungsgemäß nicht homogen, aber dennoch äußerst zufriedenstellend.

Gut zu erkennen ist im Bild der Abb. 2.35 die leicht gebogene, aber glatte PG. Lediglich eine kleine Einbuchtung in der Mitte des Kristalls ist zu erkennen. Diese wurde aber nicht zum Anlass genommen einen Hold oder Abbruch des Countdown zu riskieren, da die Störung vernachlässigbar klein ist. Zudem trat diese mittige Erscheinung bereits öfter in den Vorversuchen auf und deren Ursprung konnte weder geklärt noch kontrolliert behoben werden. Unterhalb der Phasengrenze befindet sich der klare Eiskristall, darüber das Wasser mit den 300µm-Partikeln. Zusätzlich erkennt man im unteren Bereich des Eiskristalls einen Teil mit dunkleren Flecken, das ist der übrig gebliebene Teil des zuerst erstarrten und wieder partiell rückgeschmolzenen Körpers.

Das Flugexperiment selbst lief ohne weiteren Eingriff der Operatoren in die Parameter. Nachdem manuellen Einspülen der Partikel wurde lediglich die Position der Mikroskop-Kamera gesteuert, weitere Eingriffe in die Versuchsparameter waren nicht notwendig. Das Experiment verlief ausgesprochen erfolgreich und es konnten viele Partikel im Versuchsverlauf eingefangen werden.

Nach der erfolgreichen Durchführung des Flugexperiments und nach Erhalt der hochauflösenden Videodaten von Airbus D&S wurde in Freiburg die Analyse der Daten gestartet. Zunächst wurde anhand der Videodaten die reale Wachstumsgeschwindigkeit v_{Gr} im Verlauf des Experiments ermittelt. In Abbildung 2.36 ist ein Screenshot der Flugprobe bei $t = +60s$ dargestellt, also kurz vor Erreichen von µg. Dieser Zeitpunkt wurde als Start zur Auswertung der anliegenden, realen v_{Gr} bestimmt. Die vorangegangenen Wachstumsgeschwindigkeiten sind für das Experiment irrelevant. Insgesamt wurden v_{Gr} an 3 verschiedenen Positionen ermittelt:

1. am linken Rand des Kristalls, also abgewandt von der Einspülöffnung
2. in einem mittigen Bereich, ca. 2 mm neben der „Mittenstörung“
3. in einem Bereich näher an der Einspülöffnung

Das zugehörige Diagramm der aufgetragenen v_{Gr} ist in Abbildung 2.37 dargestellt.

Die ausgewerteten Daten zeigen eine kontinuierliche Zunahme der v_{Gr} von Beginn bis Ende des Experiments. Dies war genauso gewünscht und aufgrund der Erkenntnisse aus den Vortests unter Normalbedingungen erwartet. Die Verschiebegeschwindigkeit der Phasengrenze lag zu Beginn des Experiments stabil bei ca. 2µm/s. Die Werte von $v_{Gr}=0$ stammen aus dem ersten ausgewerteten Bild, für welches noch keine Geschwindigkeit ermittelt werden konnte und entsprechen somit nicht der Realität.

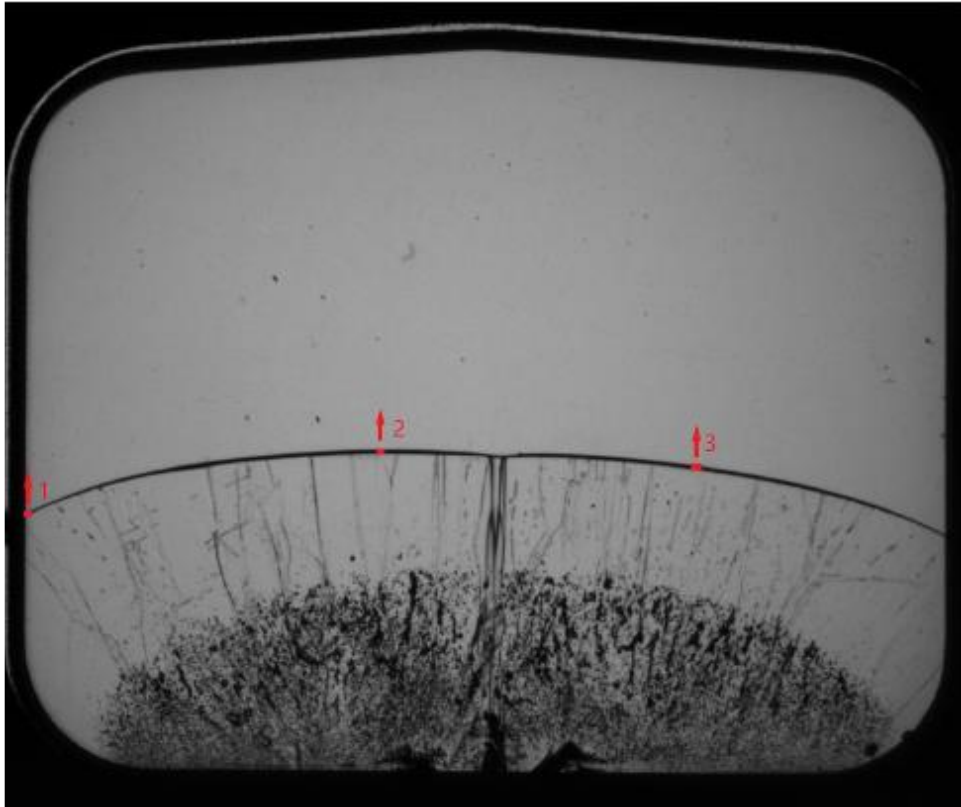


Abb. 2.36: Screenshot des Flugexperiments bei $t = +60s$, kurz vor Erreichen μ_g und Einspülen der Partikel, dieser Zeitpunkt wurde als Startpunkt für die Auswertung der realen v_{Gr} an 3 verschiedenen Positionen (1-3) bestimmt.

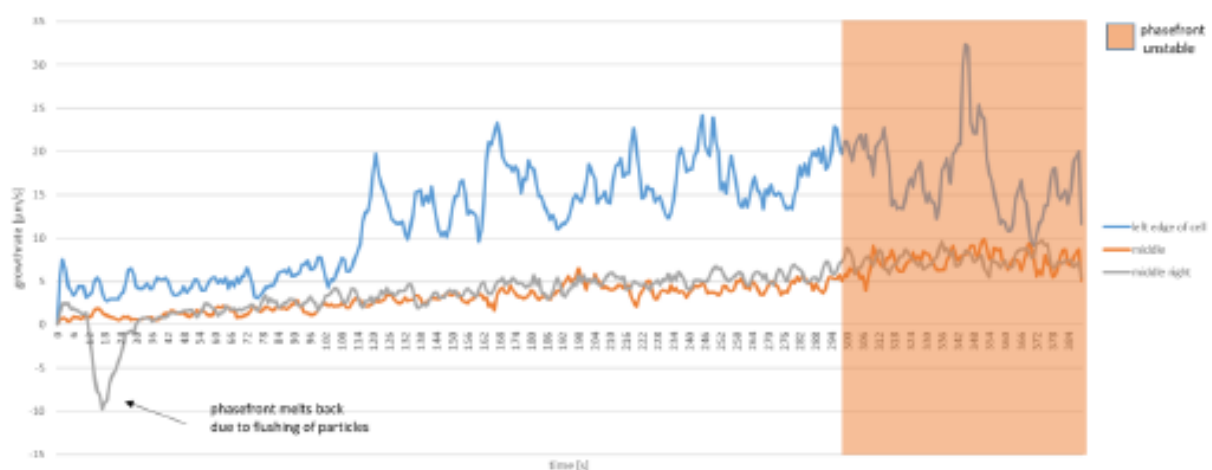


Abb. 2.37: Diagramm der ausgewerteten v_{Gr} an den 3 verschiedenen Positionen im Kristall

Die blaue Kurve im Diagramm entspricht der Messung 1, also am linken Rand der Experimentzelle. Diese v_{Gr} liegen absolut leicht höher als die anderen Messwerte. Dies liegt an der nicht symmetrischen Geometrie der Experimentzelle. Auf dieser Seite befinden sich weder Zuleitungen in Zelle noch andere Bauteile, die Einfluss auf die thermischen Eigenschaften haben. Hier bestimmen lediglich die Wärmeleitfähigkeit des Metallgehäuses und der Probe die thermischen Eigenschaften. Aus diesem Grund ist diese Seite vergleichsweise kälter und das Kristallwachstum schreitet schneller voran. Dies erkennt man auch an der leichten Asymmetrie der Phasengrenzkrümmung. Aufgrund der erhöhten v_{Gr} auf dieser Seite ist hier auch schneller eine kritische v_{Gr} von hier $6 \mu m/s$ erreicht, die zum

Zusammenbrechen der planaren Phasengrenze geführt hat. Dies äußert sich in den starken Schwankungen von v_{Gr} im Diagramm. Das Zusammenbrechen war im Versuchsverlauf jedoch lokal eingeschränkt und in einem Bereich aufgetreten, in dem keine Partikel lagen. Deshalb gab es hier auch keinen negativen Einfluss auf die Auswertbarkeit des Experiments.

Die orangene Kurve zeigt den Verlauf von v_{Gr} an Position 2, also mittig im Kristall. An dieser Position ist der insgesamt konstanteste Verlauf der Wachstumsgeschwindigkeit zu sehen. Gegen Ende des Experiments wird auch hier die kritische v_{Gr} von $6 \mu\text{m/s}$ erreicht. Auch hier verliert die Phasengrenze ihre stabile planare Form, aber nicht so schnell und drastisch wie an Messlinie 1. Insgesamt kann man dieser Messlinie entnehmen, dass das Experiment bei einer Wachstumsrate von $2 \mu\text{m/s}$ gestartet ist und diese linear auf $7-8 \mu\text{m/s}$ angestiegen ist.

Die graue Kurve repräsentiert die Messlinie 3, sie zeigt einen ähnlichen, fast identischen Verlauf wie Messlinie 2 (orange). Der einzige markante Unterschied ist ein negativer Peak in v_{Gr} bei $t = 10\text{s}$. Dieser drastische Abfall von v_{Gr} in negative Werte ist real und entspricht dem Rückschmelzen des Kristalls während des Einspülvorgangs der Partikel. Dieses Verhalten wurde bereits oben erläutert und war erwartet. Das Rückschmelzen dauerte für ungefähr 8 Sekunden an, was der wiederholten Betätigung der Pumpe entspricht, um genügend Partikel in die Zelle zu befördern. Danach erholt sich das System überraschend schnell und befindet sich nach nur weiteren 12s wieder im Gleichgewicht. Ebenso erstaunlich ist, dass in diesen 12s eine mittlere Wachstumsrate von $8 \mu\text{m/s}$ erreicht wurde, um das Rückschmelzen auszugleichen. Dennoch war in diesem Bereich, trotz zeitweisen Überschreitens der kritischen v_{Gr} , keine Instabilität der Phasengrenze zu beobachten.

Der Vergleich der experimentell gewonnenen Daten im Hinblick auf absolute Wachstumsgeschwindigkeiten und prozentuale Phasengrenz-Durchbiegungen im Verlauf des Experiments mit den von unserem Verbundpartner berechneten Simulationen stehen noch aus, allerdings zeigt sich eine gute Übereinstimmung der berechneten Phasengrenz-Form zur experimentell dargestellten. In den Abbildungen 2.38-2.40 sind die Ergebnisse der Simulationsrechnungen des Fraunhofer IISB (s. auch Abschlussberichte zum Teilvorhaben InSituKris) dargestellt. Hierbei wurden die geometrischen Vorgaben der Probenkammer, die Materialparameter des H_2O und der angelegte Temperatur-Gradient berücksichtigt. Die Berechnungen wurden damals für verschiedene, aber konstante Kühlraten von $0,2 \text{ K/min}$, $0,3 \text{ K/min}$ und $0,5 \text{ K/min}$ durchgeführt.

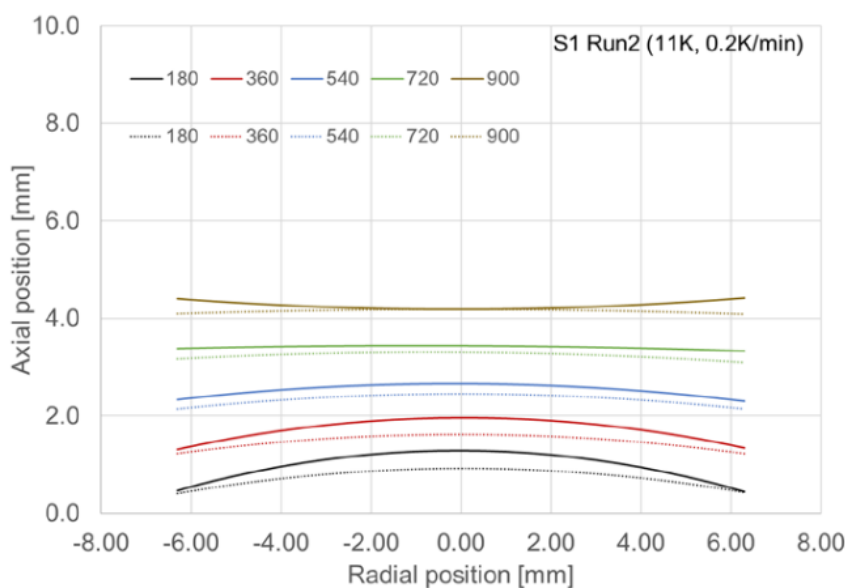


Abb. 2.38: Ergebnisse der Simulationsrechnungen bzgl. der Phasengrenzform und-position in Abhängigkeit von v_{Gr} . Dargestellt ist die berechnete Durchbiegung der Phasengrenze für Erstarrungsversuche im FM unter $1g$ (gepunktete Linien) und $0g$ Bedingungen (durchgezogene Linien) bei einer Kühlrate von $0,2 \text{ K/min}$ bei einem vertikalen Temperaturgradienten von 11K .

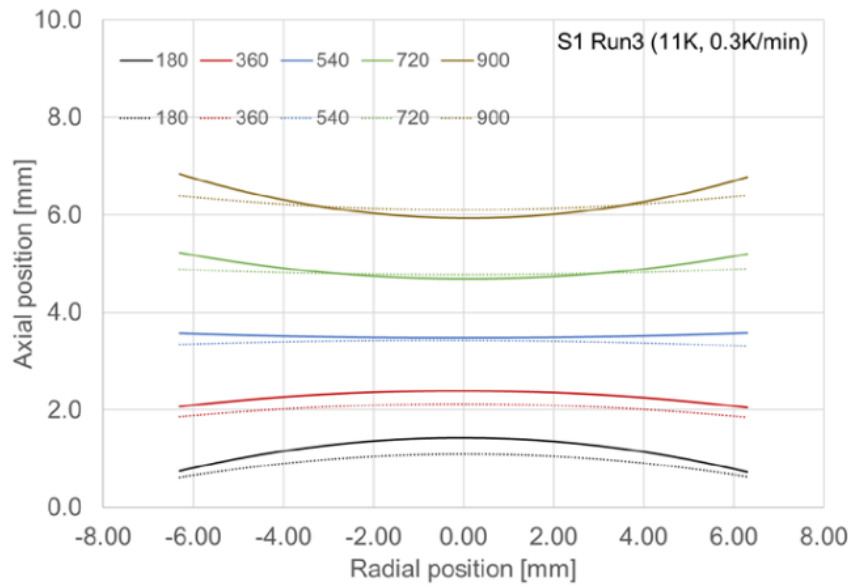


Abb. 2.39: Ergebnisse der Simulationsrechnungen bzgl. der Phasengrenzform und -position in Abhängigkeit von v_{Gr} . Dargestellt ist die berechnete Durchbiegung der Phasengrenze für Erstarrungsversuche im FM unter 1g (gepunktete Linien) und 0g Bedingungen (durchgezogene Linien) bei einer Kühlrate von 0,3 K/min bei einem vertikalen Temperaturgradienten von 11K.

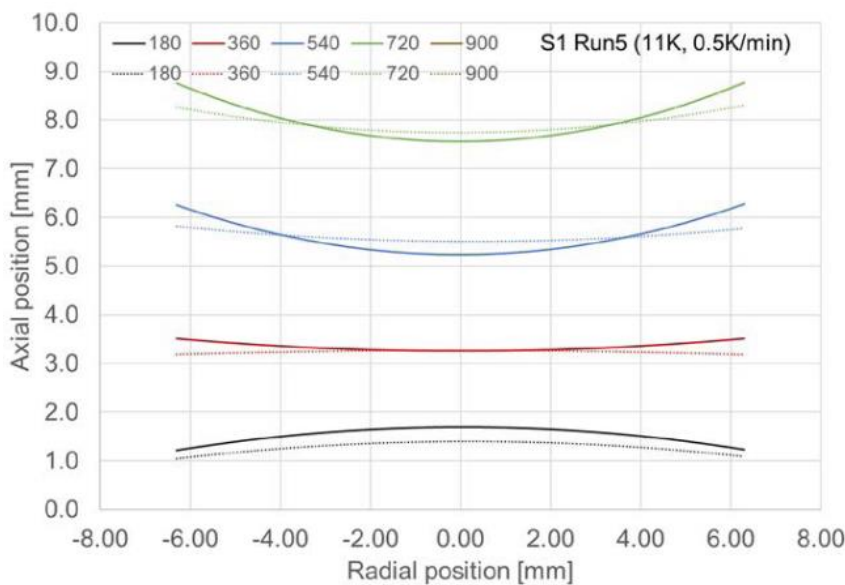


Abb. 2.40: Ergebnisse der Simulationsrechnungen bzgl. der Phasengrenzform und -position in Abhängigkeit von v_{Gr} . Dargestellt ist die berechnete Durchbiegung der Phasengrenze für Erstarrungsversuche im FM unter 1g (gepunktete Linien) und 0g Bedingungen (durchgezogene Linien) bei einer Kühlrate von 0,5 K/min bei einem vertikalen Temperaturgradienten von 11K.

Die Berechnungen ergeben ebenfalls die makroskopisch konvexe Phasengrenz-Form zu Beginn des Experiments und ein Umklappen hin zur konkaven Wachstumsfront. Die Berechnungen zeigen, dass das prinzipielle Umklappen der Form bei allen Wachstumsgeschwindigkeiten gleichermaßen stattfindet und unabhängig von der Kühlrate ist. Der Wert der Durchbiegung der Phasengrenze variiert jedoch abhängig von der angelegten Kühlrate. Vermutlich ist das auf die Wärmeleitung entlang der vertikalen Wände der Probenkammer zurückzuführen, die je nach angelegter Kühlrate relativ mehr oder weniger von der Proben-spezifischen Wärmeleitung abweicht.

Im Gegensatz zu den Erkenntnissen aus dem InSituKris-Vorhaben konnte, wie bereits oben beschrieben, im Verlauf der Auswertung der VIPer-Experimente mit den wesentlich größeren Partikeln ein deutlicher Einfluss der makroskopischen Form der Wachstumsfront auf das Einfangverhalten der Partikel beobachtet werden.

Eine Vermutung, die als mögliche Erklärung für Phänomene, die im InSituKris-Vorhaben beobachtet wurden, aufgestellt wurde, sollte im Rahmen von VIPer als Hauptaugenmerk untersucht werden. Dabei ging es, wie bereits oben detailliert erläutert, im Wesentlichen um die Wechselwirkung zwischen

Partikel und Phasengrenze und die dynamischen Prozesse, die direkt vor und während dem Partikeleinfang ablaufen. Die dort angestellte Vermutung über die potentielle Art der Wechselwirkung ist schematisch in Abbildung 2.41 dargestellt. Trotz des angepassten, aufwendigen Versuchsaufbaus mit extra großen Partikeln konnte die Reaktion der Phasengrenze nicht direkt beobachtet werden. Die Durchbiegung der Phasengrenze parallel zur optischen Achse ist selbst bei der reduzierten Ausdehnung von nur 1mm Probentiefe immer noch zu stark und die optische Einschränkung damit zu hoch, als dass die Phasengrenze in dem recht kleinen Abschnitt der Wechselwirkung direkt eingesehen werden könnte. Dennoch bekräftigen mehrere Beobachtungen aus den VIPer-Experimenten diesen Ansatz.

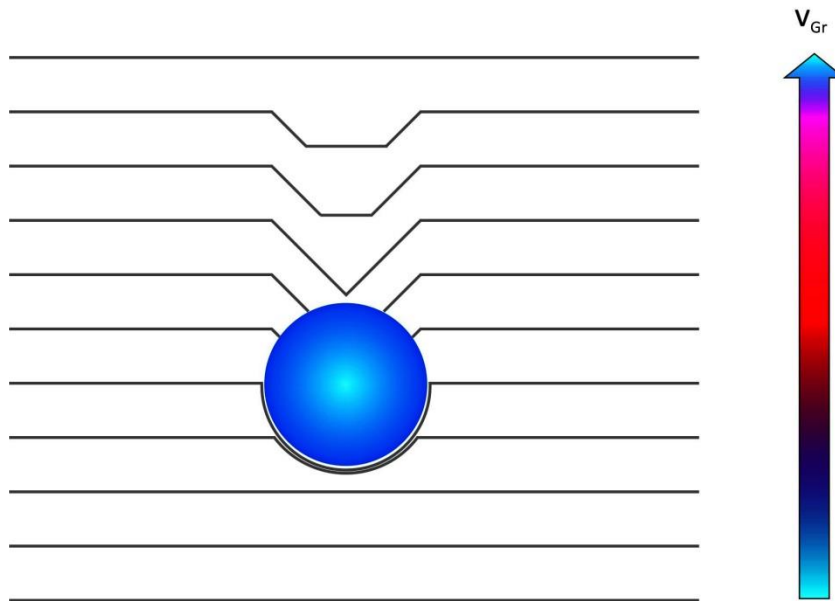
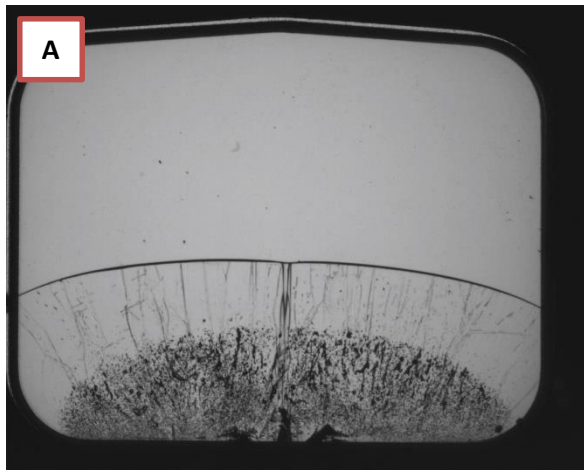


Abb. 2.41: Schematische Darstellung einer sehr wahrscheinlichen Erklärung der Bildung von Senken in der Wachstumsfront vor und nach Partikeleinbau, rechts ist die relative Wachstumsgeschwindigkeit im Zentrum nach dem Partikel farbcodiert aufgetragen (dunkelblau: sehr langsam, hellblau: „normal“, rot: sehr schnell)

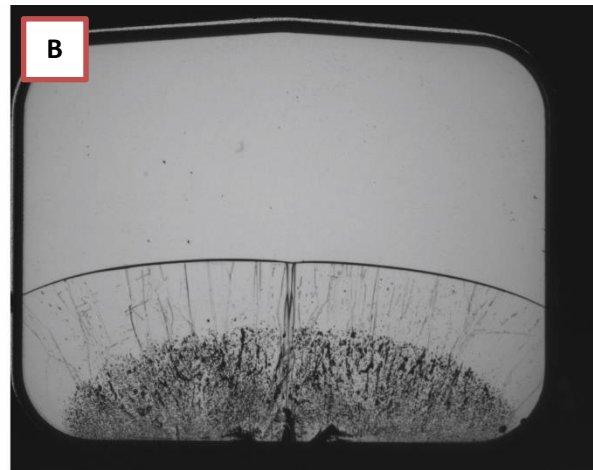
Auch wenn die mikroskopische Form der Wachstumsfront unterhalb des Partikels nicht optisch aufgelöst und beobachtet werden kann, wird vermutet, dass sich vor dem Einfang eines Partikels kurzzeitig eine trichterförmige Einkerbung an der Phasengrenze ausbildet, in welcher Partikel gefangen werden. Diese Senke zieht sich für eine gewisse Strecke noch hinter dem komplett eingebauten Partikel her, nach einer bestimmten Strecke „erholt“ sich die PG-Form und kehrt zu ihrer ursprünglichen, geraden Form zurück. Es bilden sich oberhalb der Partikel gut sichtbare Kanäle, die sich nach unterschiedlicher Länge, bis zu mehreren mm, spontan wieder schließen.

Im Folgenden wird das Flugexperiment anhand von Bildern aus dem Versuch dargestellt. In Abbildung 2.42 sind 4 Bilder der Übersichtskamera im FM gezeigt (A-D), die wichtige Zeitpunkte des Experiments markieren.

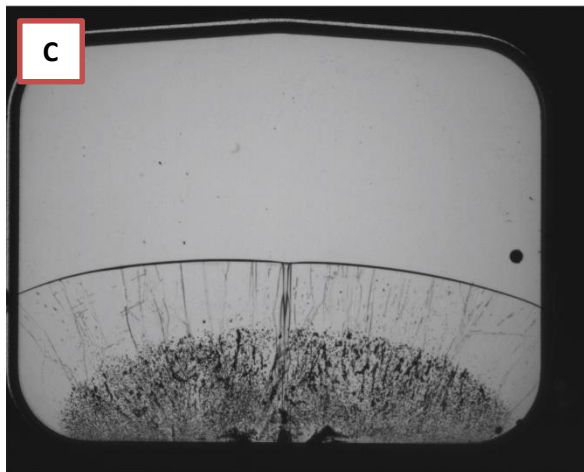
Das erste Bild (A) zeigt den Status der Probe bei Start der Videoaufzeichnung und kurz vor Eintritt in die μg -Phase. Das Kristallwachstum ist konstant und ohne sichtbare Störungen durch die hohen Beschleunigungen verursacht durch den Raketenstart abgelaufen. Die Phasengrenze hat prinzipiell eine sehr gute Position, lediglich der rechte Kristallrand, welcher an der Seite der Einspülöffnung für die Partikel liegt, ist etwas niedriger als erwartet.



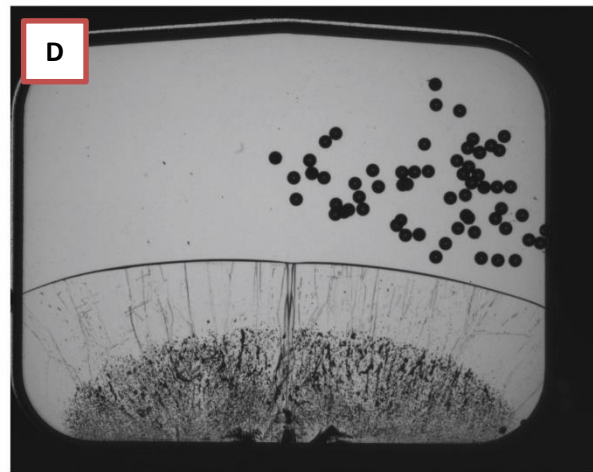
t = 60s
Start Videoaufzeichnung, Rakete noch in Beschleunigungsphase



t = 64s
Erreichen μg



t = 68s
Start Einspülen der Partikel



t = 72s
Ende Einspülen der Partikel

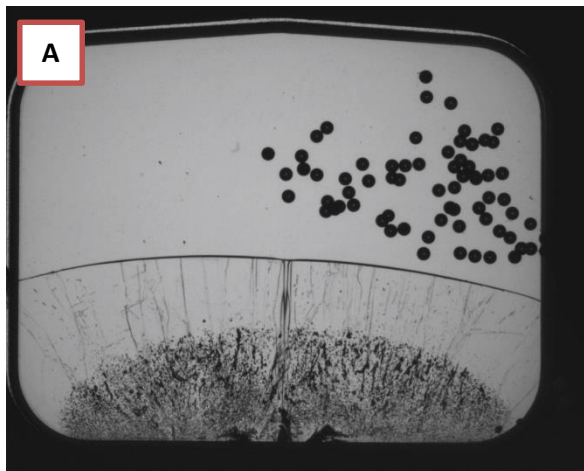
Abb. 2.42: Bilder der Probe aus dem Flugexperiment zu verschiedenen Zeitpunkten, (A) kurz vor Erreichen der μg -Phase, (B) Status bei Erreichen von μg , (C) Einspülvorgang der Partikel, erster Partikel betritt die Experimentzelle, (D) Ende des Einspülvorgangs, alle Partikel liegen in ihrer endgültigen Position.

Das zweite Bild (B) zeigt das Experiment bei Erreichen der μg -Phase. Die Phasengrenze sieht sehr symmetrisch aus und die Position ist etwas niedrig, aber dennoch in einer sehr guten Position.

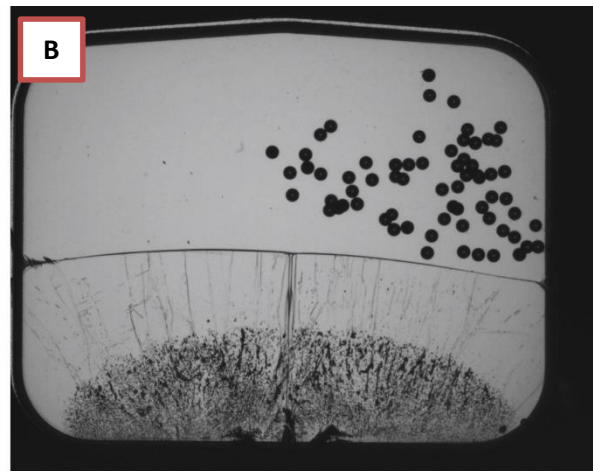
Das dritte Bild der Abb. 2.42 (C) zeigt den Moment, als der erste $300\mu m$ -Partikel die Experimentzelle betritt. Der Einspülvorgang dauert hier bereits 1-2s an, das erwartete Rückschmelzen der rechten Kristallseite ist ebenfalls schon zu erkennen.

Das vierte und letzte Bild in dieser Reihe (D) zeigt den Status der Probe nach Ende des Einspülvorgangs der Partikel an. Gut zu erkennen ist, dass alle Partikel dieselbe Größe aufweisen, es handelt sich ausschließlich um $300\mu m$ -Partikel. Leider konnten keine $500\mu m$ -Partikel eingespült werden. Nichtsdestotrotz liegen die Partikel gut verteilt im erwarteten Probenraum und sind nah an der Phasenfront positioniert.

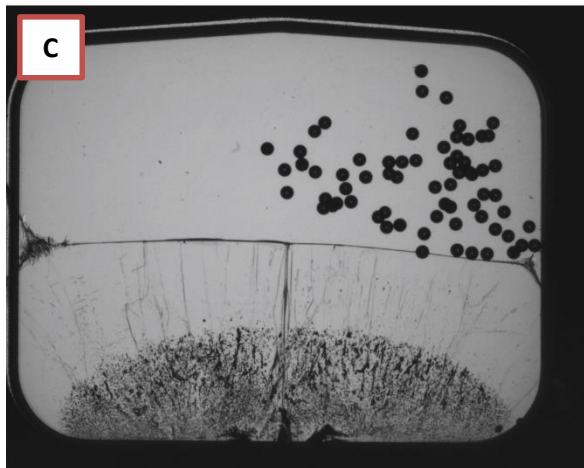
Die nächste Abbildung 2.43 zeigt weitere Bilder der Flugprobe. Sie wurden in jeweiligen Abständen von 1 Minute aufgenommen und zeigen den Experimentstatus nach jeweils 1 min, 2 min, 3 min, 4 min, 5 min und 6 min Experimentdauer.



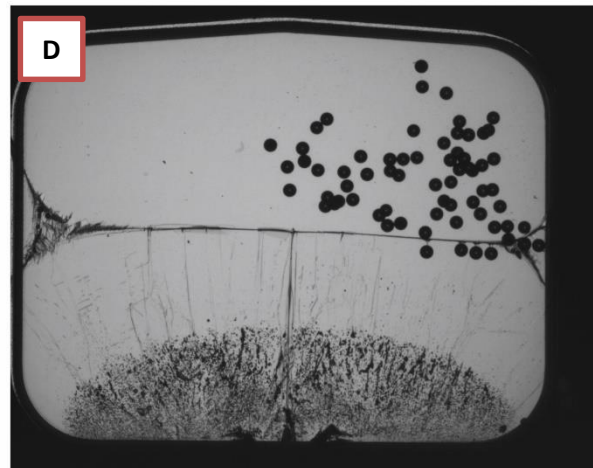
t = 135s
Experimentdauer 1 min



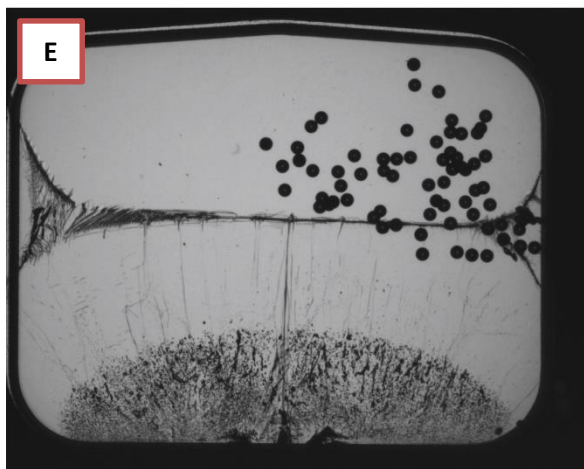
t = 195s
Experimentdauer 2 min



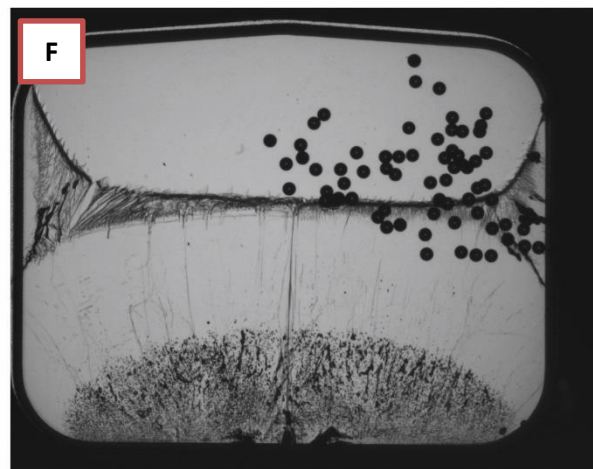
t = 255s
Experimentdauer 3 min



t = 315s
Experimentdauer 4 min



t = 375s
Experimentdauer 5 min



t = 435s
Experimentdauer 6 min

Abb. 2.43: Bilder der Übersichtskamera der Flugprobe im Abstand von jeweils 1 min

Die Bilder des Experimentverlaufs in Abbildung 2.43 zeigen, dass die einzelnen Partikel über die gesamte Dauer des Experiments kaum bis gar nicht geschoben wurden. Dies war eine der Zielsetzungen des Versuchs, da die direkte Interaktion zwischen Partikel und Phasengrenze beim Einfang beobachtet werden sollte. Ein Schieben der Partikel war nicht vorgesehen und konnte durch die Parameterwahl von Partikelgröße und v_{Gr} auch genauso umgesetzt werden.

Bereits nach 1 min Versuchsdauer (A) kann ein lokales Zusammenbrechen der Wachstumsfront an den Zellenrändern beobachtet werden. Da allerdings über 90% der Wachstumsfront stabil bleiben, stellt dies kein Problem für das Experiment selbst dar. Der Zusammenbruch der Front breitet sich mit zunehmender Versuchsdauer erwartungsgemäß Richtung Mitte weiter aus. Erst zum Ende der Experimentdauer nach 6 min (F) zeigt die Wachstumsfront keine stabilen, planaren Bereiche mehr. Zusammenfassend kann der prinzipielle Versuchsverlauf als optimal bewertet werden.

Im Folgenden werden exemplarisch einzelne Bilder, die mit der Mikroskop-Kamera im Versuchsverlauf aufgenommen wurden, besprochen.

Die folgende Abbildung 2.44 zeigt eine Detailaufnahme der Wachstumsfront zu Beginn des Flugexperiments. In der linken oberen Ecke ist eine Übersichtsaufnahme der gesamten Experimentzelle eingefügt, der Ausschnitt im großen Bild entspricht dem im dortigen roten Kasten. Darauf ist zu sehen, dass die Phasengrenze eine schöne glatte und annähernd planare Form besitzt.

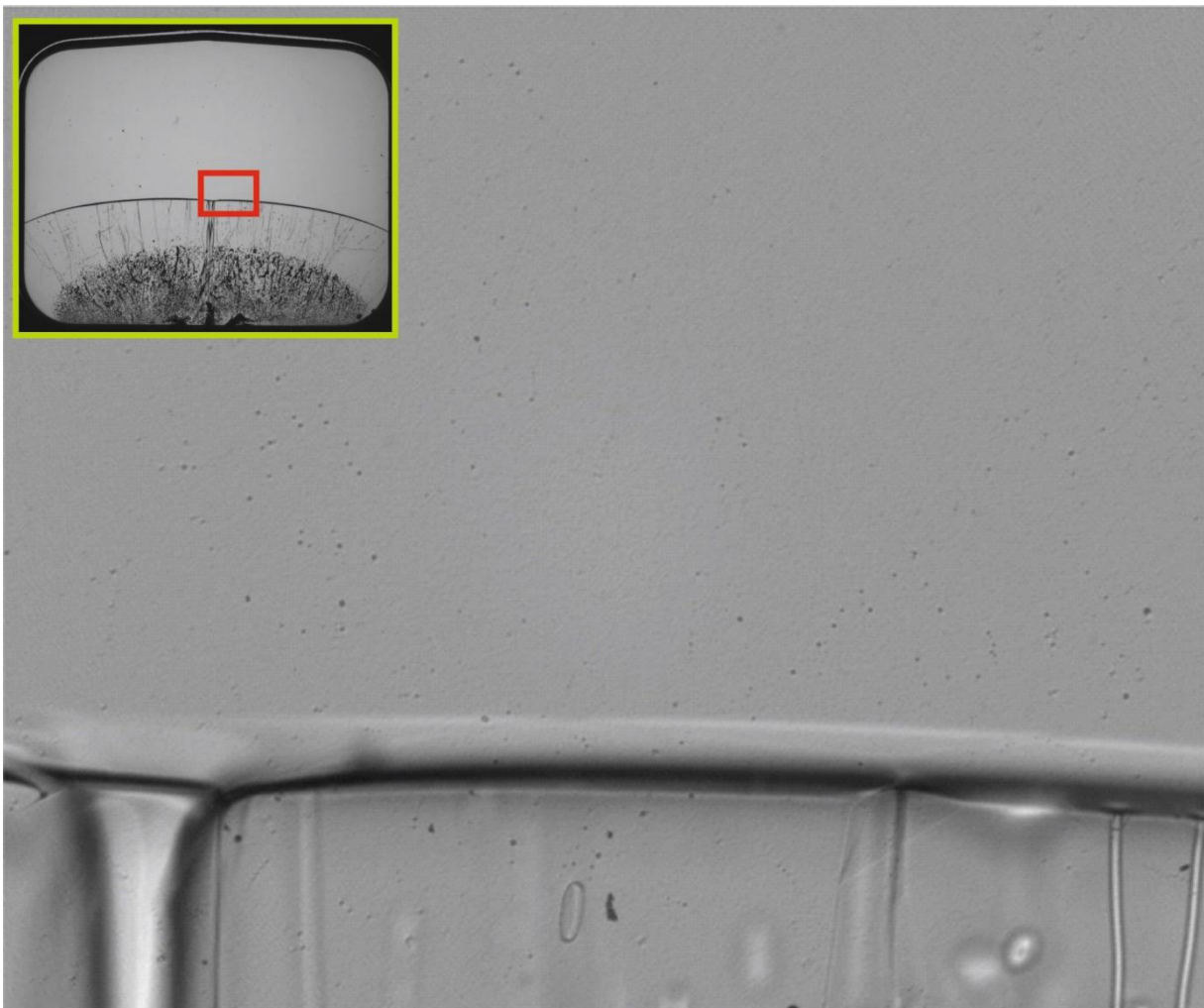


Abb. 2.44: Detailaufnahme der Phasengrenze zu Versuchsbeginn, oben links die Übersichtsaufnahme, die Detailaufnahme entspricht dem rot eingezeichneten Bildausschnitt

Als einzige Störung ist die bereits oben erwähnte „Mittelstörung“ zu sehen, bei der es sich um eine Art Kanal handelt. Vermutlich wird sie durch eine Versetzung oder Korngrenze hervorgerufen und bildet an der Ausstichstelle eine trichterförmige Vertiefung. Da diese aber stark lokal begrenzt ist und sich auch nicht ausbreitet, stellt sie keinen Nachteil für den Versuchsverlauf dar.

Abbildung 2.45 zeigt einen Partikel-Grenzflächen-Kontakt im zeitlichen Verlauf. Es handelt sich hierbei um einen unbeschichteten Partikel, gut zu erkennen an dem helleren Bereich im Zentrum des Partikels.

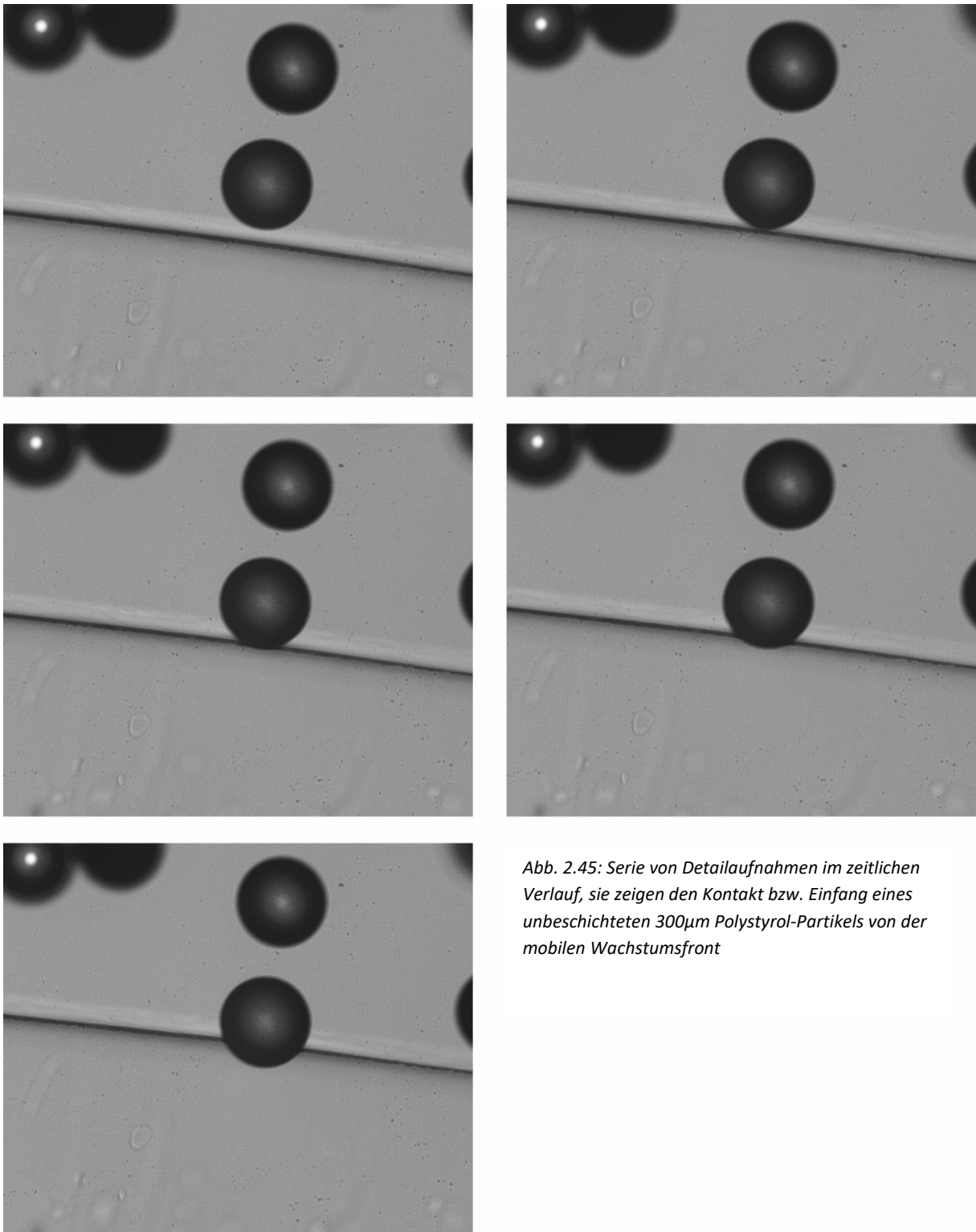


Abb. 2.45: Serie von Detailaufnahmen im zeitlichen Verlauf, sie zeigen den Kontakt bzw. Einfang eines unbeschichteten 300µm Polystyrol-Partikels von der mobilen Wachstumsfront

Die Serie von Detailaufnahmen in Abbildung 2.45 zeigt, dass die Phasengrenze keine erkennbare Reaktion auf die Annäherung zum Partikel zeigt und scheinbar auch keine Formänderung bei Einbau des Partikels durchläuft. Die Phasengrenze ist hier sehr flach und gut zu erkennen. Diese Aufnahme entstand in den ersten 2 Minuten des Flugversuchs, damit war v_{Gr} noch vergleichsweise gering. Bei genauerer Betrachtung der Interaktionsfläche bei höherer Vergrößerung kann eine Reaktion der Phasengrenze in Form der Ausbildung einer Mulde unterhalb des Partikels erahnt werden. Abbildung 2.46 zeigt eine solche vergrößerte Darstellung. Unterhalb des Partikel bildet sich auf der Wachstumsfront eine dunklere Fläche aus. Da das Licht senkrecht zur Bildebene eingestrahlt wird, kann ein Schattenwurf des Partikels ausgeschlossen werden. Allerdings wurde eine lokale konkave Krümmung der Phasengrenze dieses optische Phänomen erzeugen. Aus diesem Grund ist davon auszugehen, dass hier eine schwache Reaktion auf die Partikelannäherung zu sehen ist.

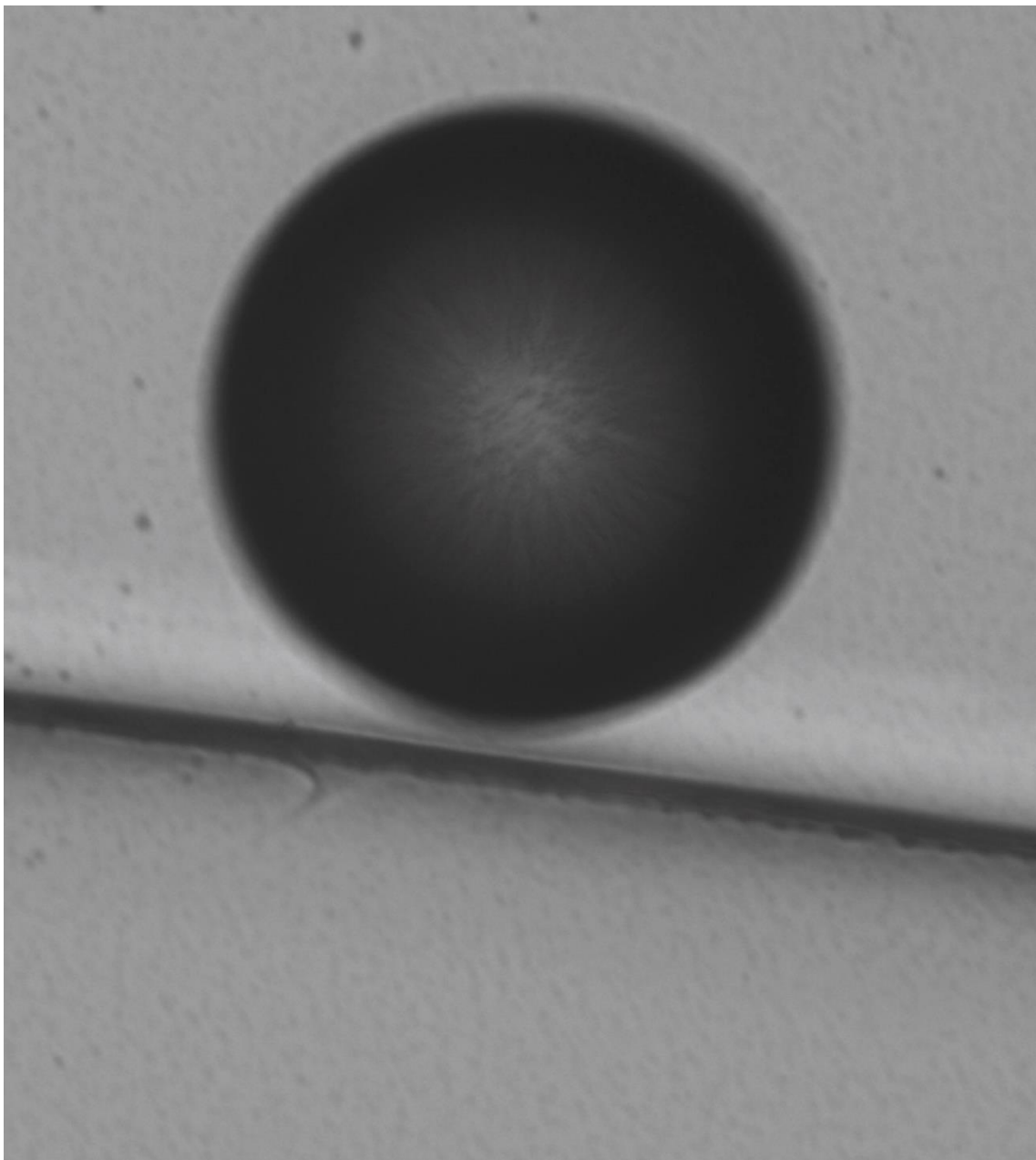


Abb. 2.46: vergrößerte Detailaufnahme der Interaktion zwischen Partikel und Wachstumsfront

Abbildung 2.47 zeigt eine weitere Serie von Detailaufnahmen.

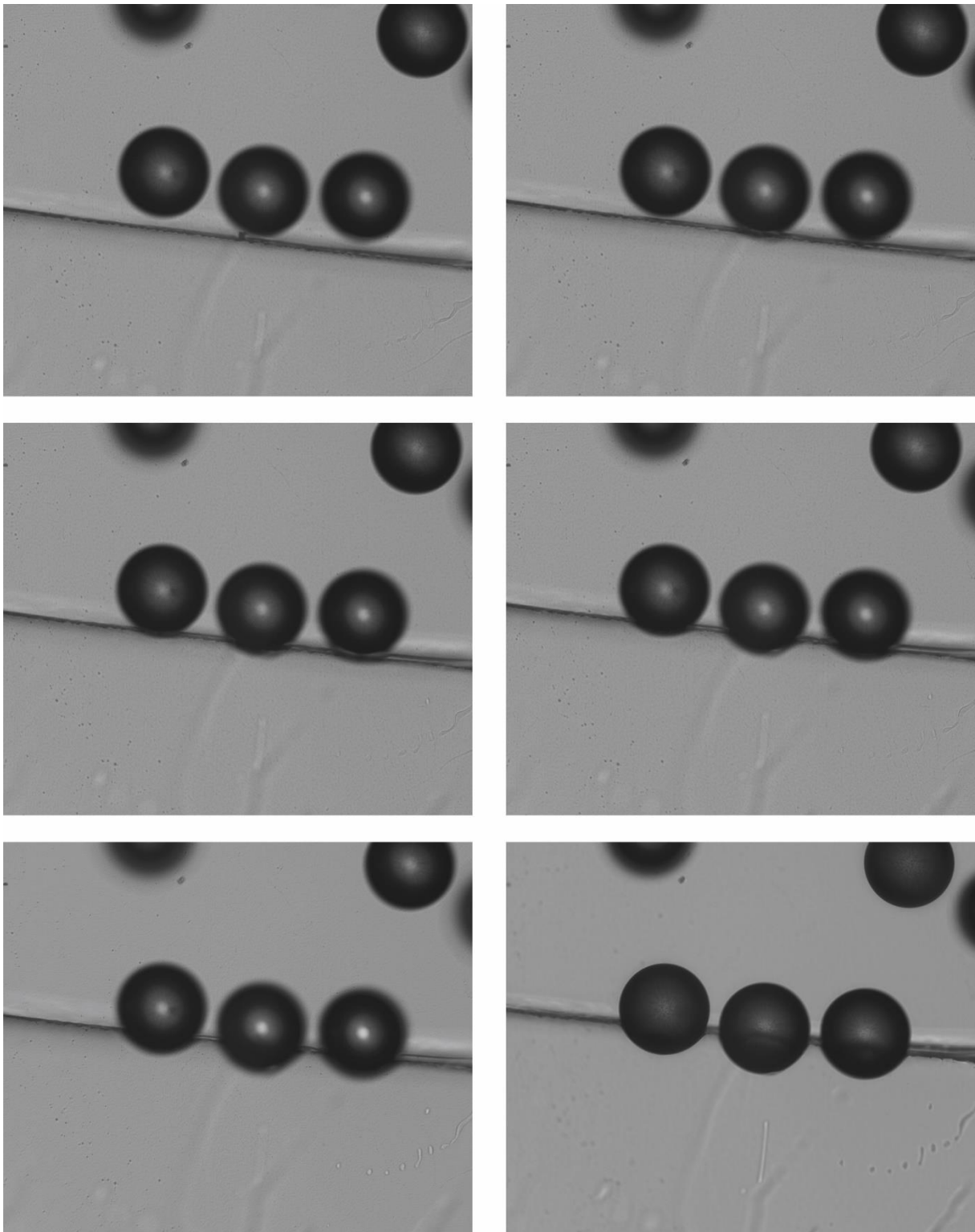


Abb. 2.47: Serie von Detailaufnahmen, die den Einfang von insgesamt 3 unbeschichteten Partikeln zeigt.

Das Einbauszenario aus Abbildung 2.47 entstand etwas später, zeitlich ungefähr mittig im Versuchsverlauf, d.h. v_{Gr} war verglichen mit dem in Abbildung 2.45 und 2.46 gezeigten Einfang bereits etwas höher. Hier ist ebenfalls zu sehen, dass die Wachstumsfront bei dieser Vergrößerung keine sichtbare Formänderung vor dem Kontakt mit dem Partikel aufweist. Zum Zeitpunkt des direkten

Kontakts von Partikel und Wachstumsfront biegt sich diese allerdings stark um die sphärischen Partikel herum. Dies ist besonders gut auf dem 3. und 4. Bild der Reihe zu erkennen. Nach der Hälfte des Einbaus erholt sich die Phasengrenzform wieder und bildet ihre ursprünglich planare Form aus.

In Abbildung 2.48 ist eine weitere Serie von Detailaufnahmen aus dem Versuchsverlauf dargestellt.

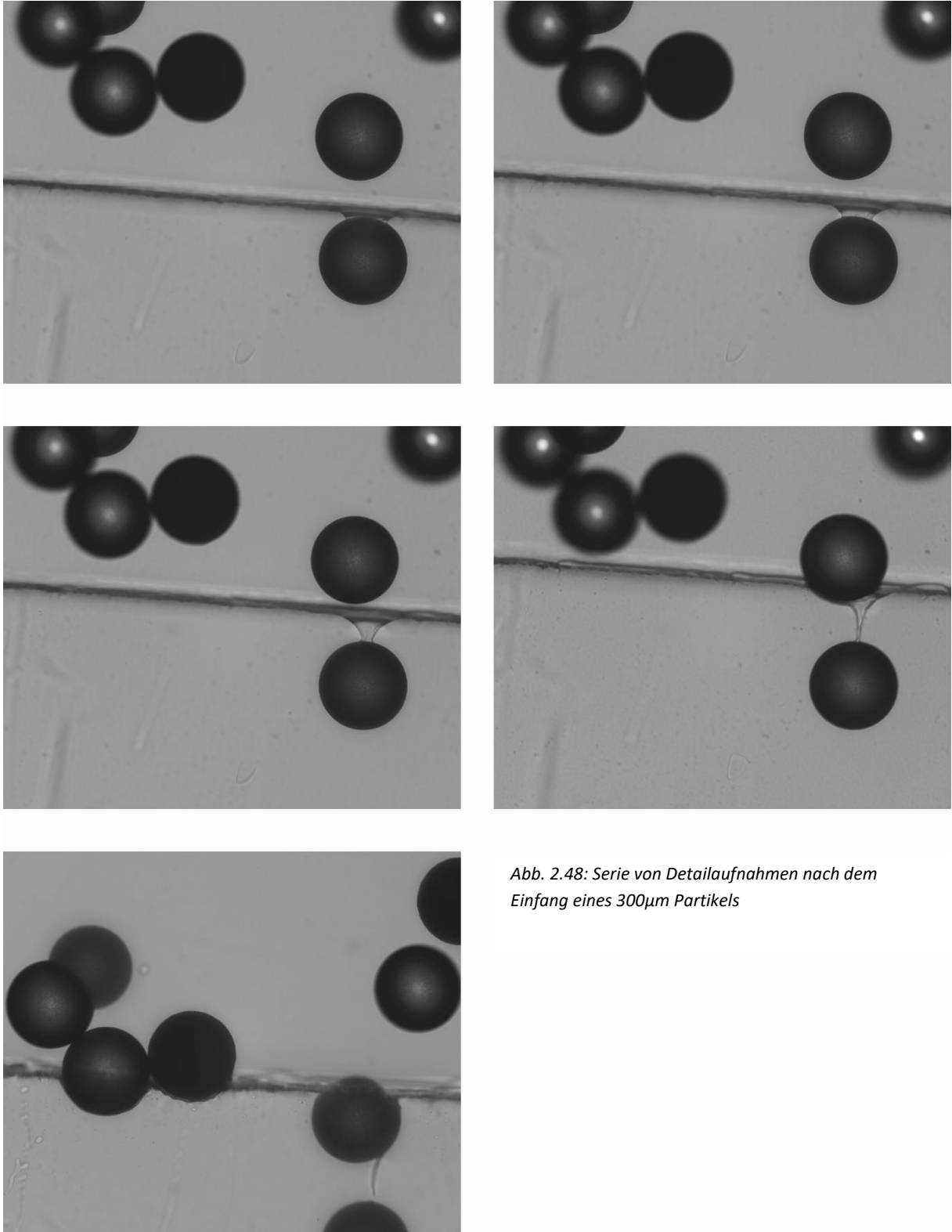


Abb. 2.48: Serie von Detailaufnahmen nach dem Einfang eines 300µm Partikels

Da der Fokus des VIPer-Experiments auf dem „Erstkontakt“ zwischen Partikel und Phasengrenze liegt und die meisten Detailaufnahmen deshalb dieses Szenario dokumentieren, gibt es kaum Aufnahmen der Prozesse, die ablaufen, wenn der Partikel eingebaut und überwachsen ist. Abbildung 2.48 zeigt als eine der wenigen Aufnahmen genau diesen Vorgang. Im Verlauf der Serie ist gut zu erkennen, dass sich oberhalb des dort eingebauten Partikels (rechte Bildseite) ein Kanal mit anderen optischen Eigenschaften bildet. Es wird vermutet, dass die Phasengrenze am Partikel „haften“ bleibt, da dieser aufgrund seiner Wärmekapazität eine lokale Wärmequelle darstellt und die weitere Kristallisation nach oben hin verhindert. Erst nach weiterem Kristallwachstum scheint sich der Kanal zu schließen und eine kleine strukturelle Störung im Kristall zu hinterlassen. Dass Fremdphasenpartikel in einem Kristallgefüge für strukturelle Defekte verantwortlich sind, ist bekannt.

Abbildung 2.49 zeigt den Einfang von zwei Partikel, dabei handelt es sich um einen beschichteten (rechts) und einen unbeschichteten (links).

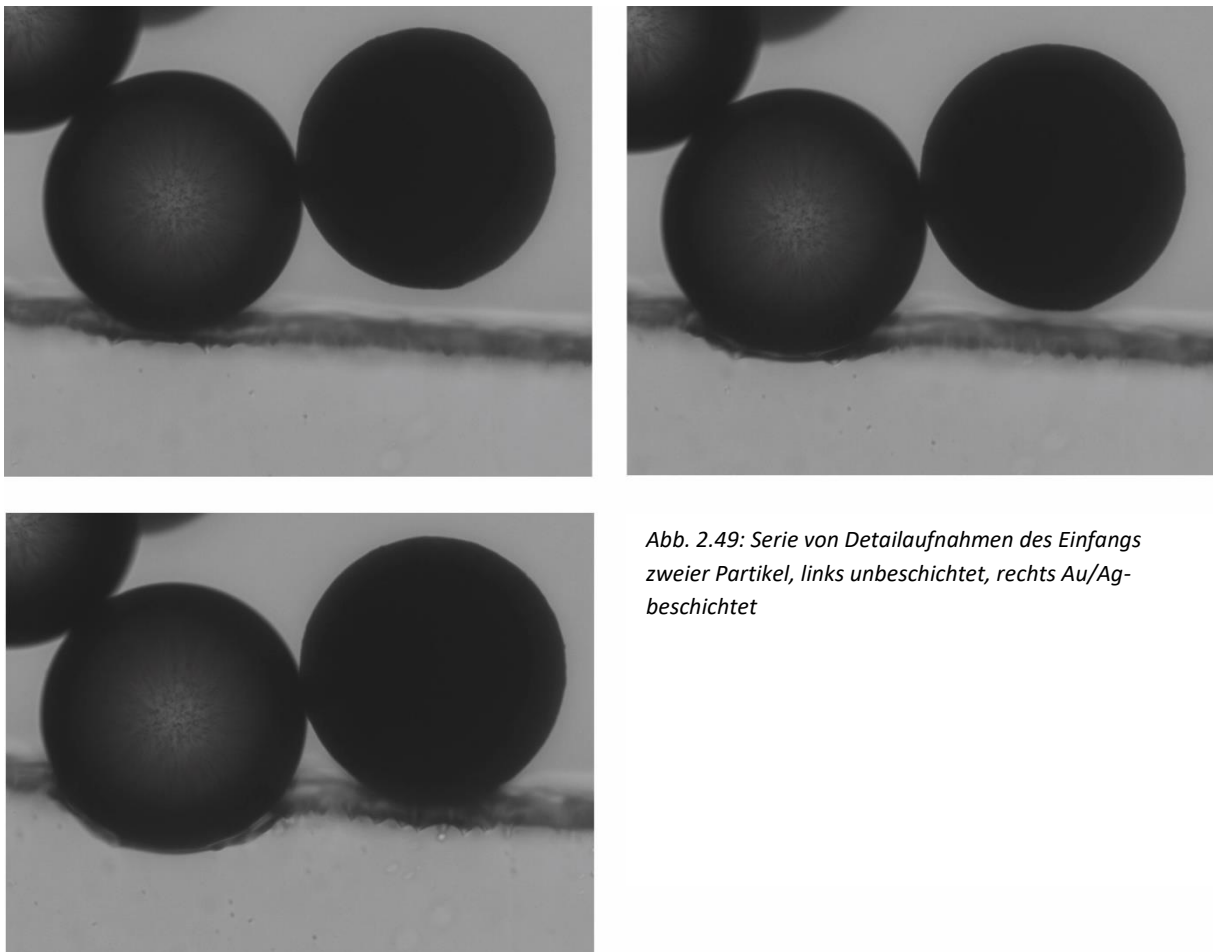


Abb. 2.49: Serie von Detailaufnahmen des Einfangs zweier Partikel, links unbeschichtet, rechts Au/Ag-beschichtet

Die direkte Vergleichbarkeit macht diese Aufnahmen besonders interessant. Es werden bei nahezu identischen Bedingungen Partikel von unterschiedlicher Sorte eingefangen und eingebaut. Makroskopisch betrachtet gibt es wenig Unterschied im Einfangverhalten, aber bei genauerer Betrachtung und Vergrößerung der Ausschnitte ist ein großer Unterschied im Verhalten der Phasengrenze zu erkennen. Eine solche Vergrößerung ist in Abbildung 2.50 dargestellt.

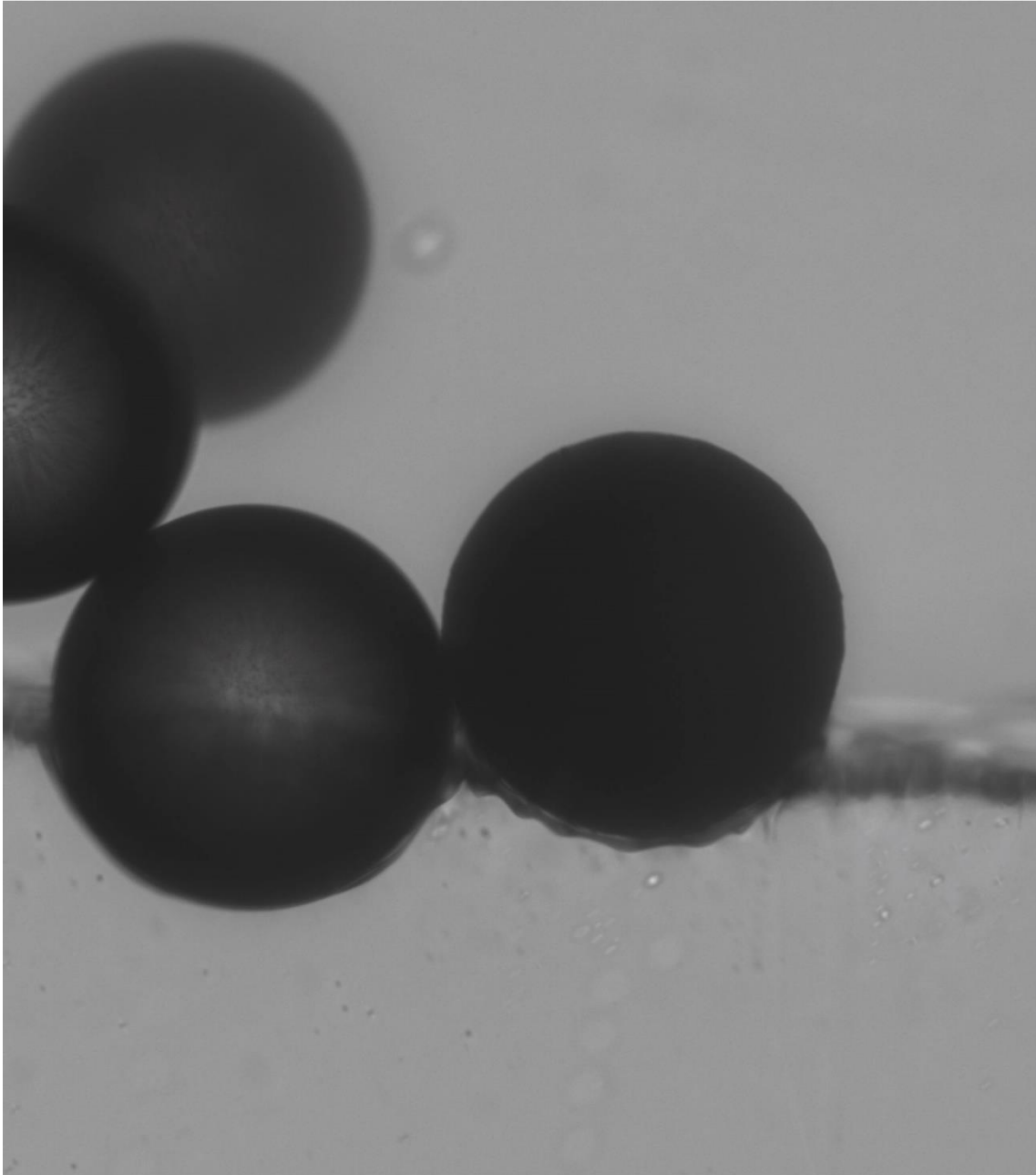


Abb. 2.50: Detailaufnahme des Einfangs eines unbeschichteten (links) und beschichteten Partikel (rechts)

Dieses Bild ist dahingehend interessant, dass es den Einfang der beiden unterschiedlichen Partikelsorten aus Abbildung 2.49 zum annähernd gleichen Zeitpunkt in direkter Nachbarschaft, also bei gut vergleichbaren Bedingungen zeigt. In beiden Fällen biegt sich die Wachstumsfront unterhalb des Partikel konkav durch, allerdings unterscheiden sich die Morphologien der Mulden stark voneinander. Während die unter dem unbeschichteten Polystyrol-Partikel glatt erscheint (wie es auch bereits bei Einfangszenarien zuvor beobachtet wurde) stellt sich die Mulde unterhalb des metallbeschichteten Partikels gezackt bzw. sehr rau dar. Die gezackte Form stellt eine zusätzliche Quelle für Störungen der Struktur auf atomarer Ebene dar, da hier weitere Fremdphasen, wie z.B. Gase, eingeschlossen werden können. Wird keine Fremdphasen, sondern Schmelze eingeschlossen, kann das im Wesentlichen 2 nachteilige Effekte haben:

1. Durch die Dichteanomalie des Wassers, kann eine spätere Kristallisation im geschlossenen Raum, die ja immer mit einer Volumenzunahme einhergeht, zu Brüchen oder Rissen im Kristall führen.
2. Kristallisiert die eingeschlossene Schmelze später spontan aus, können sich Kristallite unterschiedlicher Orientierung ausbilden. Aufgrund der prinzipiell anisotropen Eigenschaften von Kristallen, werden dann auch lokal unterschiedliche Materialeigenschaften die Folge sein. Dies kann zu erheblichen Beeinträchtigungen bei der Verwendung als kleindimensionalen Bauelementen führen.

Da in diesem speziellen Fall, der in Abbildung 2.49 dargestellt ist, eine direkte Vergleichbarkeit von Partikeln mit unterschiedlichen Oberflächeneigenschaften möglich ist, müsste hier mithilfe theoretischer Modelle nachvollzogen werden, welche Oberflächeneigenschaften zu solch einem morphologischen Unterschied führen können. Zu diesen potentiellen Eigenschaften zählen:

- Wärmeleitung
- Oberflächenpotentiale (z.B. Zeta-Potential)
- Wärmekapazität
- Grenzflächeneffekte, z.B. Marangoni-Konvektion

In ersten Überlegungen spielt die Wärmeleitung mit höchster Wahrscheinlichkeit eine Rolle, da bei Partikeln mit höherer Wärmeleitfähigkeit schneller Wärme aus dem oberen, noch flüssigen Bereich der Probe nach unten Richtung Phasengrenze geleitet werden kann. Dies müsste aber wie erwähnt mithilfe von Simulationen untersucht werden.

Die Abbildung 2.51 zeigt eine Detailaufnahme vom Ende des Flugversuchs. Die Wachstumsfront stellt sich bereits nicht mehr planar dar, sie ist zusammengebrochen.

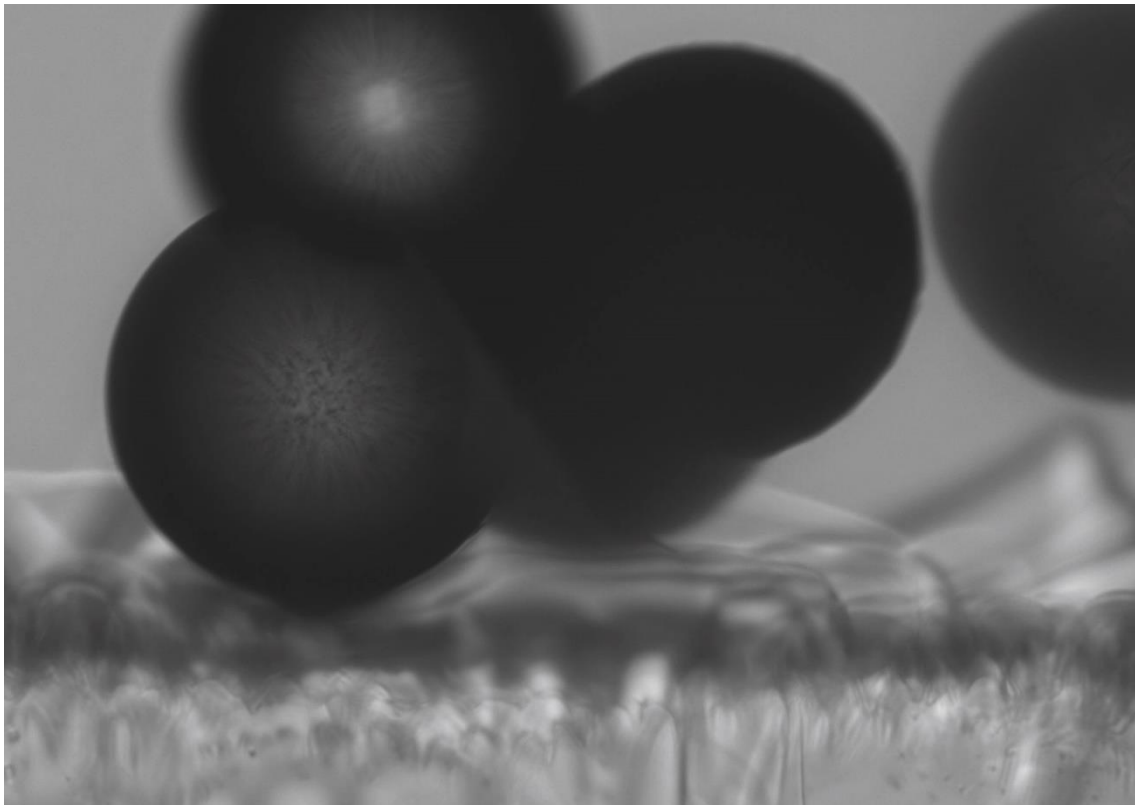


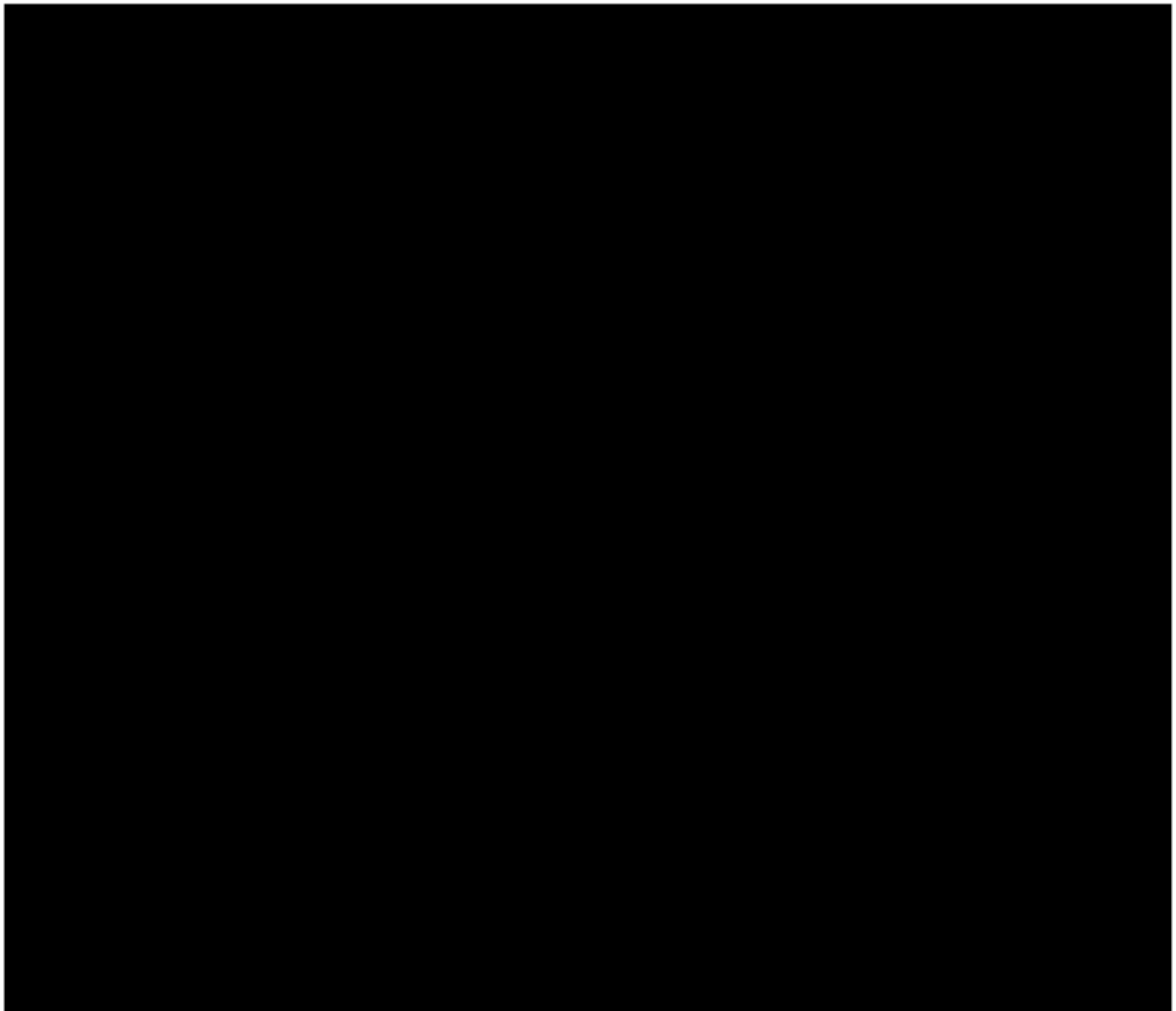
Abb. 2.51: Detailaufnahme des Experimentendes

Selbst in der instabilen Phase des Kristallwachstums ist eine Reaktion der Wachstumsfront auf die Partikel zu beobachten. Im Moment der Aufnahme aus Abb. 2.51 befand ein unbeschichteter Partikel kurz vor dem Einfang, die Durchbiegung der Wachstumsfront ist auch hier deutlich zu erkennen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die komplexe Fragestellung des VIPer-Vorhabens, die Visualisierung der Partikel-Phasengrenzen-Interaktion, äußerst erfolgreich umgesetzt werden konnte. Es konnten unter Bedingungen, die den zu evaluierenden, theoretischen Modellen bestmöglich angepasst waren, verschiedene Szenarien des Partikeleinfangs genau dokumentiert werden. Dabei konnten auch Partikel mit unterschiedlichen Eigenschaften im direkten Vergleich hoch zeitlich und hoch orts aufgelöst gefilmt werden. Die Daten und einhergehenden Erkenntnisse, die mit den Vorhaben InSituKris und VIPer geschaffen und gewonnen wurden, bilden eine ausgezeichnete Grundlage für die Qualifizierung von theoretischen Modellen, die sich mit dem Einbauverhalten von Fremdphasen in erstarrende Medien befassen.

Die detaillierte und umfassende Beschreibung der theoretischen und simulatorischen Arbeiten unseres Verbundpartners Fraunhofer IISB mit und zu den experimentellen Daten ist in deren (Teil-) Abschlussbericht zu finden.

2.2 Wichtige Positionen des zahlenmäßigen Nachweises



2.3 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Das Forschungsvorhaben VIPer hatte eine Laufzeit von insgesamt 3 Jahren. In diesem Zeitraum wurde zwei Flugexperimente mit je einer neuen Fragestellung geplant, vorbereitet, durchgeführt und ausgewertet. Die mit Corona einhergehenden Einschränkungen haben sich erschwerend auf die Durchführung aller Versuche ausgewirkt. Dennoch konnten alle Hürden gemeistert werden und das Vorhaben zeit- und ressourcengerecht erfolgreich abgeschlossen werden.

Der geleistete Arbeitsaufwand, wie er sich aus den vorangegangenen Kapiteln ergibt, war daher notwendig und angemessen.

2.4 Verwertung der Ergebnisse

Die Ergebnisse des Vorhabens wurden während des Projektzeitraums lediglich auf dem ESA-PAC Symposium in Biarritz, Frankreich und im Rahmen eines Fachkolloquiums am IKZ in Berlin als wissenschaftliche Beiträge national und international der Öffentlichkeit zugänglich gemacht. Dies ist wie oben bereits beschrieben maßgeblich den Einschränkungen der Corona-Pandemie geschuldet. Ein weiterer Faktor ist das erst spät im Vorhaben stattgefundene Flugexperiment auf TEXUS 58. Zum Berichtszeitpunkt gibt es eine Veröffentlichung mit ersten Erkenntnissen des Vorhabens in einer wissenschaftlichen Fachzeitschrift und eine weitere mit konkreten wissenschaftlichen Ergebnissen ist in Arbeit.

Zusätzliche wissenschaftliche Ergebnisse aus dem Vorhaben VIPer werden in weiteren Veröffentlichungen in den nächsten Monaten und Jahren von unserem Verbundpartner Fraunhofer IISB der Öffentlichkeit zur Verfügung gestellt. Eine Veröffentlichung durch die Kristallographie Freiburg kann nicht mehr erfolgen, da der Lehrstuhl und die entsprechende Arbeitsgruppe geschlossen wurden. Die wissenschaftliche-technischen Ergebnisse können nichtsdestotrotz weiterhin die Grundlage für weiterführende Projekte bilden:

- I. Die Auswertung der „ICESAGE-“ (vormals „RDGS“) Experimente auf der ISS zusammen mit der NASA; die Projektergebnisse waren Teil des „Requirements Definition Review“ (RDR), das von der NASA im Juni 2017 für ICESAGE durchgeführt wurde.
- II. Eine eventuelle, weiterführende Arbeit der Kollegen des Fraunhofer IISB in Bezug auf diese Fragestellung und darüber hinaus.
- III. Die Zusammenarbeit mit Prof. J.J. Derby der University of Minnesota im Hinblick auf die erweiterte Simulation des Partikeleinfangverhaltens.

2.5 Fortschritte an anderer Stelle

In der Projektlaufzeit sind keine neuen, relevanten Ergebnisse bekannt geworden, die die Vorhabenziele in Frage gestellt hätten oder dass diese hätten modifiziert werden müssen.

2.6 Veröffentlichungen

Konferenzbeiträge (Vorträge):

P. Ott, T. Jauß, H. Koch, C. Kranert, T. Sorgenfrei: „VIPer: In-situ Observation of Particle Interface Interactions in a Transparent Melt“, ESA-PAC Symposium, Biarritz, Frankreich, 1.-6.5.2022

T. Sorgenfrei: „Microgravity as tool to understand phenomena in crystal growth“, Crystal Growth Colloquium, IKZ, Berlin, 22.8.2022

geplant:

H. Koch, P. Ott, T. Jauß, T. Sorgenfrei, M. Hainke, C. Kranert, J. Friedrich: „Investigation of the interaction between solidification processes and particle transport in the melt for terrestrial and microgravity conditions” ESA-PAC Symposium, Luzern, Schweiz, 19.-23.5.2024

H. Koch, S. Hürner, T. Jauss, T. Sorgenfrei, M. Hainke, C. Kranert, J. Friedrich: “Modeling of solidification processes under consideration of particle transport in the melt for terrestrial and microgravity conditions”, CIMTEC 2024 - Global Conference “Materials in an Explosively Growing Informatics World” (Invited Talk), Montecatini Terme, Italy, 20.-24-6.2024

Referierte Veröffentlichungen:

*H. Koch, S. Hürner, T. Jauss, T. Sorgenfrei, M. Hainke, C. Kranert, J. Friedrich: „ Modeling of solidification processes under consideration of particle transport in the melt under terrestrial and microgravity conditions”, Journal of Crystal Growth **607** (2023) 127127; <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2023.127127>*

Abschlussarbeiten:

d’Argent, B.: „Visualisierung fluidaler Strömungen mittels Schlieren-Optik“, B.Sc. Abschlussarbeit, Kristallographie, Universität Freiburg, 2021

Ott, Philipp: “Visualization of fluid dynamic phenomena and particle-interface-interactions during crystallization”. MSc Abschlussarbeit (2021) Kristallographie, Universität Freiburg

3. Erfolgskontrollbericht

Die Ergebnisse des Projektes sind im Bereich der Grundlagenforschung an angewandten, industriell wichtigen Materialien mit Proben im Labormaßstab gewonnen worden.

3.1 Schutzrechte

Es wurden keine Schutzrechte beantragt.

3.2 Wirtschaftliche Erfolgsaussichten

Direkte Einnahmen aus Lizenzen etc. gab es nicht und sind nicht zu erwarten, da es sich um Grundlagenforschung handelt. Eine sofortige Übertragung auf die Produktion verkäuflicher Produkte ist daher nicht möglich. Die veröffentlichten Ergebnisse sind aber als Grundlage für zukünftige industrielle Methoden, z.B. zur Optimierung von industriellen Kristallzüchtungsprozessen und deren Simulation, nutzbar für die Metall-, Halbleiter- und Solarindustrie in Deutschland.

3.3 Wissenschaftliche und technische Erfolgsaussichten

Während der Projektlaufzeit wurden die Ergebnisse des Projekts in 2 Beiträgen auf wissenschaftlichen Konferenzen sowie einer referierten Veröffentlichung der Öffentlichkeit zugänglich gemacht, siehe Kapitel 2.6 des Abschlussberichts. Zusätzliche wissenschaftliche Ergebnisse aus dem Projekt werden in weiteren Veröffentlichungen und Vorträgen, v.a. durch den Verbundpartner Fraunhofer IISB, in den nächsten Monaten und Jahren publiziert werden. Die Einschränkungen der Corona-Pandemie hat die Möglichkeit der Präsentation auf Tagungen massiv eingeschränkt. Prinzipiell sollen die Ergebnisse aber im Rahmen mehrerer nationaler und internationaler Konferenzen und Seminare veröffentlicht werden.

3.4 Wissenschaftlich-technische Ergebnisse

Die wissenschaftliche-technischen Ergebnisse können eine Grundlage für weiterführende Projekte anderer Arbeitsgruppen bilden:

- I. Die Auswertung der „ICESAGE-“ (vormals „RDGS“) Experimente auf der ISS zusammen mit der NASA; die Projektergebnisse waren Teil des „Requirements Definition Review“ (RDR), das von der NASA im Juni 2017 für ICESAGE durchgeführt wurde.
- II. Eine eventuelle weiterführende Facharbeit der Kollegen des Fraunhofer IISB und darüber hinaus.
- III. Die Zusammenarbeit mit Prof. J.J. Derby der University of Minnesota im Hinblick auf die erweiterte Simulation des Partikeleinfangverhaltens.

4. Arbeiten, die zu keiner Lösung geführt haben

Sowohl die Experimente auf der Parabelflugkampagne und in Teile auch auf der TEXUS-Mission lieferten nicht im vollen Umfang die Daten, die erwartet waren und worauf die einzelnen Experimente abgestimmt waren. Nichtsdestotrotz wurden aus allen Boden- und Flugexperimenten wertvolle Erkenntnisse gewonnen, die zur weiterführenden Klärung der im Antrag dargelegten offenen Fragestellungen führten. Aus diesem Grund ist das Vorhaben VIPer aus wissenschaftlicher Sicht äußerst erfolgreich abgeschlossen worden. Zusammenfassend gibt es keine Arbeiten, die zu keiner Lösung geführt haben.

5. Präsentationsmöglichkeiten für mögliche Nutzer

s. Abschnitt 3.2 und 3.3

6. Einhaltung der Ausgaben- und Zeitplanung

Die Zeitplanung wurde für das Hauptvorhaben vollumfänglich umgesetzt und eingehalten. Die Vorbereitung und Teilnahme an der Parabelflugkampagne und der TEXUS 58-Mission verlief ausnahmslos erfolgreich.

Die Projektmittel wurden zweckgebunden eingesetzt und das Budget annähernd eingehalten.

Referenzen

- [Arg 21] d'Argent, B.: Visualisierung fluidaler Strömungen mittels Schlieren-Optik, B.Sc. Abschlussarbeit, Kristallographie, Universität Freiburg, 2021
- [Ges 24] Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung (IFA) (2009). GESTIS-Stoffdatenbank Wasser, URL: <https://gestis.dguv.de/data?name=001140>, am (1.3.2024)
- [Ges 24a] Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung (IFA) (2009). GESTIS-Stoffdatenbank Natriumnitrat, URL: <https://gestis.dguv.de/data?name=011990>, am 1.3.2024
- [Ges 24b] Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung (IFA) (2009). GESTIS-Stoffdatenbank Natriumnitrat, URL: <https://gestis.dguv.de/data?name=001330>, am 1.3.2024
- [Ges 24c] Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung (IFA) (2009). GESTIS-Stoffdatenbank Natriumnitrat, URL: <https://gestis.dguv.de/data?name=001760>, am 1.3.2024
- [Gui 24] Guidechem, URL: <https://www.guidechem.com/encyclopedia/glycine-sulfate-dic319175.html>, am 1.3.2024
- [Hen 03] Henry, W.: Experiments on the Quantity of Gases Absorbed by Water, at Different Temperatures, and under Different Pressures. In: Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Band 93, 1. Januar 1803, S. 29–274, doi:10.1098/rstl.1803.0004
- [Ker 21] Kern: Materialdaten Polystyrol, URL: https://www.kern.de/de/technisches-datenblatt/polystyrol-ps?n=2101_1, am (20.7.2021)
- [Mic 17] Micro Particles GmbH, Sicherheitsdatenblatt "Mikropartikel auf Polystyrolbasis", 24.10.2017
- [Ott 21] Ott, Philipp: Visualization of fluid dynamic phenomena and particle-interface-interactions during crystallization. MSc Abschlussarbeit (2021) Kristallographie, Universität Freiburg
- [Pav 18] Pavuluri, S.: Kinetic approach for modeling salt precipitation in porous-media. (Staatsexamensarbeit), University of Stuttgart, 2014
- [Spe 24] Spektrum.de: Lexikon der Optik: URL: <https://www.spektrum.de/lexikon/optik/schlierenmethoden/2956>, am 1.3.2024