



# Schlussbericht nach Nr. 4.1 NKBF 2017

## Teile I und II:

### Kurzbericht und Eingehende Darstellung

<b>Zuwendungsempfänger:</b>	<i>Muegge GmbH, Hochstraße 4-6, D-64386 Reichelsheim</i>
<b>Förderkennzeichen:</b>	<i>03SF0618E Projektträger Jülich, Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich Frau Dr. Désirée van Holt</i>
<b>Vorhabenbezeichnung:</b>	<i>Verbundvorhaben NexPlas: NEXT GENERATION PLASMA CONVERSION – Integration von „grünem Wasserstoff“ in die Plasma- Konversion von CO<sub>2</sub></i>
<b>Laufzeit des Vorhabens:</b>	<i>01.03.2021-31.08.2024 (nach kostenneutraler Verlängerung um 6 Monate)</i>
<b>Berichtszeitraum:</b>	<i>01.03.2021 – 31.08.2024</i>

Autor: Dr. Amandine Guissart  
im Namen der MUEGGE-Kollegen, die am NexPlas-Projekt gearbeitet haben



## I.1. Kurzfassung

Ziel des Projekts NexPlas ist die Herstellung von Methanol – einem wichtigen Rohstoff für die chemische Industrie – aus „grünem Wasserstoff“ und Kohlenmonoxid, das durch Spaltung von CO<sub>2</sub> gewonnen wird. Im Projekt wird die innovative Kombination eines Plasmaverfahrens mit einem Membranverfahren zur Synthese von Methanol untersucht. Die gemeinsamen wissenschaftlich-technischen Ziele sind das Verständnis der plasma-physikalischen und plasmachemischen Grundlagen eines CO<sub>2</sub>/Wasserstoff-Plasmas, die Lösung der materialwissenschaftlichen Herausforderungen der Entwicklung geeigneter keramischer Hohlfasermembranen und die anschließende Integration des Membranprozesses in den Plasmareaktor zur Entnahme überschüssigen Sauerstoffs. Mit der Vor-Ort-Produktion sowie der „On-Demand“-Verfügbarkeit kann der „grüne Wasserstoff“ in Form des flüssigen Methanols mit einer hohen Energiedichte und Produkt-sicherheit in eine bestehende Infrastruktur integriert werden. Das NexPlas-Projekt steuert einen Baustein für die Machbarkeit der Energiewende und Wasserstoffwirtschaft bei.

## I.2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde und Gesamtziel des Vorhabens

Der aktuelle Stand zur Nutzung von Mikrowellen-Plasmaverfahren mit regenerativen Energien basiert auf dem Kopernikus-Satelliten-Projekt „Plasma-induzierte CO<sub>2</sub>-Konversion“ (PiCK). Das Projekt PiCK basiert auf der Kombination eines Atmosphärendruck-Mikrowellenplasmas mit einem Membranverfahren. Das Grundprinzip des Plasma/Membran-verfahrens von PiCK besteht aus der Dissoziation von CO<sub>2</sub> in einem Mikrowellenplasma in CO und ein Sauerstoffradikal. Der Sauerstoff wird mittels einer Membran aus der Gasphase entfernt, um das CO zu gewinnen. Das Plasmaverfahren zeichnet sich gegenüber Alternativen, wie z.B. Elektrolyseverfahren, durch eine außerordentliche Flexibilität bei der Prozessregelung und Robustheit gegenüber Schwankungen der Eduktreinheit aus. Entsprechend des Angebots an elektrischer Energie aus regenerativen Quellen ermöglicht der Plasmaprozess ein schnelles An- und Abfahren. Der Stofffluss kann daraufhin abgestimmt werden. Das Projekt NexPlas konzentriert sich auf die plasmatechnologische Synthese von Methanol aus CO<sub>2</sub> (Wissen und Prüfstand von PiCK als Basis) und „grünem Wasserstoff“ beziehungsweise Wasser. Grundsätzlich werden unterschiedliche Prozessanordnungen untersucht (Abb. 1).

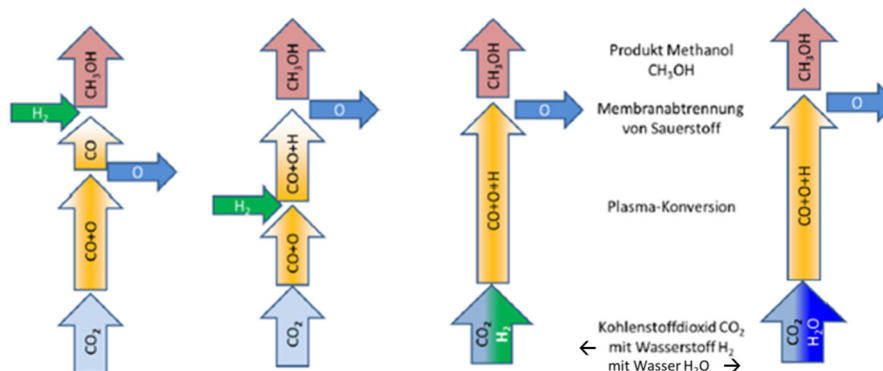


Abb. 1: Unterschiedliche Prozessanordnungen untersucht im NexPlas Projekt



### I.3 Planung und Ablauf des Vorhabens

Das Projekt NexPlas gliedert sich entsprechend der einzelnen Teilaspekte in 7 Arbeitspunkte AP (Abb. 2). Das Projektkonsortium wurde aus 7 Partnern zusammengestellt, um die komplexen Anforderungen aus dem plasmabasierten Methanolsyntheseprozesses mit passgenauer Expertise adressieren zu können. Jeweils ein Partner ist für seinen fachspezifischen Arbeitspunkt verantwortlich (Muegge AP3). Die Firma Muegge übernimmt die wichtige Funktion, die (evtl. überschüssige) elektrische Energie aus regenerativen Quellen effizient in Mikrowellenenergie zu wandeln, um damit das Mikrowellenplasma zu betreiben. Entwickelt werden sehr schmalbandige, in der Frequenz und Pulsbarkeit präzise einstellbare Mikrowellenquellen im ISM-Band (Industrial-Scientific-Medical). Um eine Mikrowellensteuerung basierend auf der Anbindung an die verschiedensten Anlagen- und Prozessleitsysteme zu ermöglichen (beispielsweise OES-Verfahren oder Daten des Netzbetreibers), werden dafür geeignete Schnittstellenverfahren und Regelungsalgorithmen entwickelt und implementiert.

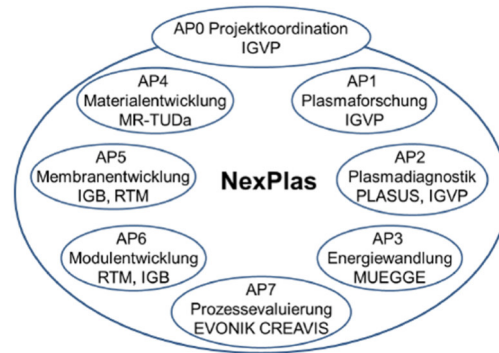


Abb. 2: Arbeitspunkten vom NexPlas Projekt

### I.5 Wesentlichen Ergebnisse sowie ggf. die Zusammenarbeit mit anderen Forschungseinrichtungen

Im Rahmen des Arbeitspunkts AP3 wurden folgende Ergebnisse erzielt (mehr Information im Sachbericht Teil II.1) :

- Inbetriebnahme der Mikrowellenversorgung und Mikrowellenmesstechnik beim Projektkoordinator IGVP für die Grundlagenversuche mit Keramikmembran-Materialien.
- Durchführung von Untersuchungen der Wechselwirkung verschiedener Mikrowellenprozessparameter auf das Atmosphärendruckplasma beim IGVP und bei Muegge.
- Durchführung spektroskopischer Untersuchungen am Atmosphärendruckplasma in Stuttgart beim IGVP in Zusammenarbeit mit PLASUS und IGVP.
- Bereitstellung von Geräte und Schnittstellen zur Implementierung eines Regelungskonzepts zur Bereitstellung der optimalen Mikrowellenleistung hinsichtlich Leistung, Frequenz und Pulsmuster, basierend auf der externen Datenlage (z.B. Daten der optischen Emissionsspektroskopie und des Energieversorgungsunternehmens).

Darüber hinaus trieb Muegge in Zusammenarbeit mit dem Projektkoordinator IGVP die Verbesserung und Weiterentwicklung des Mikrowellen-Plasmareaktors voran und dadurch unterstützte die Projektarbeit insbesondere des Projektkoordinators IGVP und des Projektpartners IGB.

## II.1 Verwendung der Zuwendung und des erzielten Ergebnisses im Einzelnen, mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele

- Arbeitspaket AP3.1 – Energieversorgung - Aufbau des Plasmabrenners

### Kurze Beschreibung der Ziele des Arbeitspaketes

- Inbetriebnahme der Mikrowellenversorgung und Mikrowellenmesstechnik beim Projektkoordinator IGVP für die Grundlagenversuche mit Keramikmembran-Materialien
- Durchführung von Untersuchungen der Wechselwirkung verschiedener Mikrowellenprozessparameter auf das Atmosphärendruckplasma beim Projektkoordinator IGVP und bei Muegge vor Ort in Reichelsheim
- Durchführung erster spektroskopischer Untersuchungen am Atmosphärendruckplasma in Zusammenarbeit mit dem Projektpartner PLASUS und dem Projektkoordinator IGVP in Stuttgart beim Projektkoordinator IGVP

### Im Arbeitspaket AP 3.1 erzielte Ergebnisse

Der Testbetrieb mit dem bestehenden Mikrowellenplasmabrenner erlaubt die Materialtests für die Keramikmaterialien, die Hohlfasern können auf ihre Langzeit-Stabilität untersucht werden, und die optische Prozessüberwachung mit dem spektroskopischen Plasmamonitoring ist betriebsbereit und kann erprobt werden. Die Inbetriebnahme und der Testbetrieb für die Materialtests zu den Keramikmaterialien wurde von Muegge aktiv unterstützt.

Parallel zum Testbetrieb des Mikrowellenplasmabrenners beim Projektkoordinator IGVP wurden von Muegge vor Ort in Reichelsheim weitere Tests zur Variation der Mikrowellen- bzw. Prozessparameter durchgeführt. Das Hauptaugenmerk lag dabei auf der Variation der Mikrowellenleistung. Diese Tests sollten Rückschlüsse darauf erlauben, ob die Wasserkühlung des Resonators bei zunehmender Mikrowellenleistung immer noch ausreichend ist oder optimiert werden muss. Bei den Tests mit dem 6 kW-Mikrowellennetzteil und entsprechendem 6 kW-Magnetronkopf konnte mit der bestehenden Wasserkühlung auch über lange Prozessdauern die Temperatur des Resonators ohne Probleme konstant gehalten werden. Über diese Tests hinaus wurde mittels zusätzlicher Düsen aus hochtemperaturbeständigem Edelstahl untersucht (Abb. 3), wie gut und stabil sich das (Luft-)Plasma formen lässt. Mit diesen Versuchen zur Plasmaführung mittels zusätzlicher Düse konnte demonstriert werden, dass das Plasma des Mikrowellenplasmabrenners gezielt formbar ist und damit auf die aktive Fläche der (gebündelten) Hohlfasermembranen zur Abtrennung des Sauerstoffs nach der Kohlendioxid (CO<sub>2</sub>)-Konversion angepasst werden kann.

Weitere Versuche wurden mit einem 10 kW-Mikrowellennetzteil und einem entsprechenden 10 kW-Magnetronkopf durchgeführt. Auch bei diesen Tests wurden die Mikrowellen- bzw. Prozessparameter variiert. Unter anderem konnte bei der Variation des Gasflusses (hier: Luft) durch den 2,45 GHz-Mikrowellenplasmabrenner festgestellt werden, dass mit zunehmendem Gasfluss die vertikale Ausdehnung des Luftplasmas deutlich abnimmt.

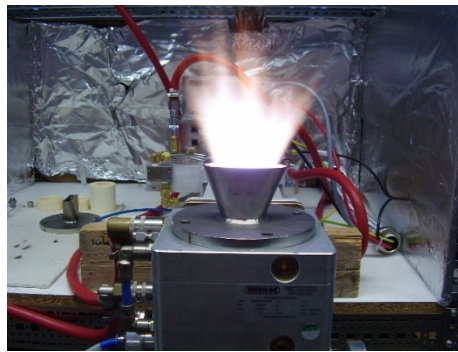


Abb. 3: Atmosphärendruckmikrowellenplasmaquelle mit zusätzlichen Düse

- Arbeitspaket AP3.2 – Energieversorgung - Energie-Regelungskonzept

#### Kurze Beschreibung der Ziele des Arbeitspaketes

Aufbauend auf AP3.1 erfolgt die Implementierung eines Regelungskonzepts zur Bereitstellung der optimalen Mikrowellenleistung hinsichtlich Leistung, Frequenz und Pulsmuster basierend auf der externen Datenlage aus beispielsweise der Prozessüberwachung aus den OES-Daten und der Daten des Energieversorgungsunternehmens

#### Im Arbeitspaket AP 3.2 erzielte Ergebnisse

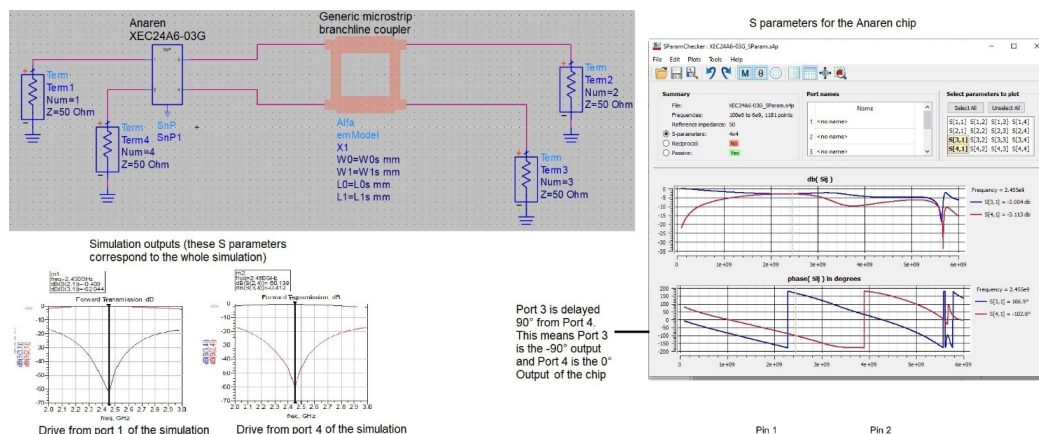
Um Mikrowelle hinsichtlich Leistung, Frequenz und Pulsmuster optimal bereitstellen zu können, empfiehlt sich der Einsatz der Mikrowellenhalbleiternetzteiltechnologie statt der aktuell vorherrschenden magnetronbasierten Mikrowellentechnologie. Mit Hilfe der Mikrowellenhalbleiternetzteiltechnologie ist es möglich, die Mikrowellenleistung (nahezu) stufenlos einzustellen, die Frequenz in einem bestimmten Bereich zu variieren (für die 2,45 GHz-Halbleiternetzteile ist dies der Bereich zwischen ca. 2,4 GHz und 2,5 GHz) sowie die Phasenlage von zwei oder mehreren Halbleiternetzteilen zueinander gezielt einzustellen. Darüber hinaus können Mikrowellenhalbleiternetzteile bis in den zweistelligen kHz-Bereich gepulst werden, während das Pulsen von Magnetrons lediglich bis zu einer Pulsfrequenz von etwa 1 kHz realisiert werden kann.

Da das beim Vorgängerprojekt 03SFK2S3C-PiCK gewählte Konzept für die phasengleiche Kombination der Mikrowellenhalbleiternetzteile für höhere Mikrowellengesamtleistungen mit zunehmender Zahl der phasengleich zu kombinierenden Mikrowellenhalbleiternetzteile eine nahezu exponentiell zunehmende Komplexität aufwies, wurde für das Nachfolgeprojekt 03SF0618E-NexPlas ein neues Konzept für die phasengleiche Kombination mehrerer Halbleiternetzteile verfolgt, das eine wesentlich geringere Komplexität aufzuweisen versprach. Die Schwierigkeiten bei der praktischen Umsetzung des für das Vorgängerprojekt 03SFK2S3C-PiCK gewählten Konzepts für die phasengleiche Kombination von Mikrowellenhalbleiter äußerten sich bereits bei der Verschaltung von vier 250 W-Mikrowellenhalbleiterbauelementen zur Gesamtausgangsleistung von 1 kW, bei denen die vier Halbleiterbauelemente bei zunächst niedriger Eingangsleistung in einem speziellen Mode angeregt werden mussten. In diesem Zustand erfolgte über Phasenschieber die automatische Phasensynchronisierung der Ausgangssignale der vier Halbleiterbauelemente, um diese phasensynchron zusammenschalten zu können. Erst nach

erfolgreich Phasensynchronisierung konnte die Eingangsleistung erhöht werden, um schließlich die maximale Ausgangsleistung des Mikrowellenhalbleiternetzteils von 1 kW zu erreichen.

Das nun im Nachfolgeprojekt O3SF0618E-NexPlas verfolgte Konzept basiert auf einer neuartigen Signaltreiberplatine für insgesamt acht Leistungsmodulen von je 500 W Mikrowellenausgangsleistung. Auf jedem dieser acht Leistungsmodulen sind zwei Mikrowellenhalbleiterchips mit jeweils 250 W Mikrowellenausgangsleistung phasensynchron miteinander verschaltet. Neben dieser neuartigen Hardware muss auch eine neue Software entwickelt werden.

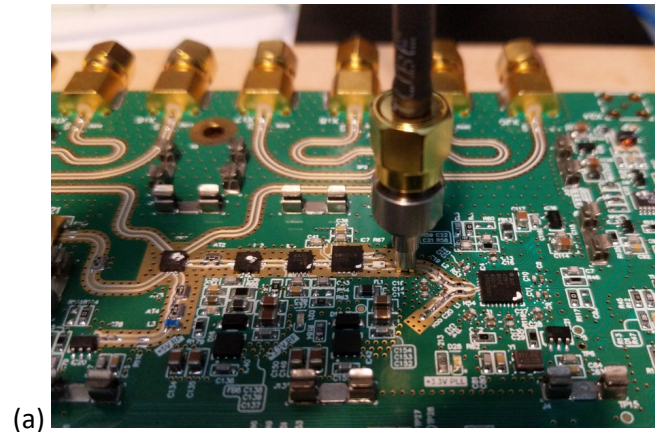
Um das neue Konzept für die Mikrowellenhalbleiternetzteile mit der neuartigen Signaltreiberplatine für die phasensynchrone Verschaltung von insgesamt acht Leistungsmodulen von je 500 W Mikrowellenausgangsleistung bewerten zu können, wurden entsprechende Simulationen durchgeführt. In der folgenden Abb. 4 sind beispielhaft einige Simulationsergebnisse für die Kopplungsstruktur zu den Leistungsmodulen mit jeweils zwei Mikrowellenhalbleiterchips à 250 W Mikrowellenausgangsleistung dargestellt, welche über diese Kopplungsstruktur phasensynchron miteinander verschaltet sind. Konkret sind dies die frequenzabhängigen Reflexionsfaktoren für die Schnittstellen 1 und 4 der Kopplungsschaltung (unten links in der Abb. 4), welche jeweils im Frequenzbereich zwischen etwa 2,1 GHz und etwa 2,8 GHz einen Dämpfungswert von maximal -20 dB und im Frequenzbereich von etwa 2,4 GHz bis etwa 2,5 GHz sogar von unter -50 dB aufweisen. Dieses Simulationsergebnis ist ein sehr guter Indikator für die gute Nutzbarkeit dieser Kopplungsstruktur im technischen Einsatz. Des Weiteren sind im rechten Bereich von Abb. 4 die Simulationsergebnisse für die Phasenbeziehung der Schnittstellen 3 und 4 der Kopplungsstruktur zu erkennen. Diese Simulationsergebnisse stimmen sehr gut mit den erwarteten Phasenbeziehungen überein.



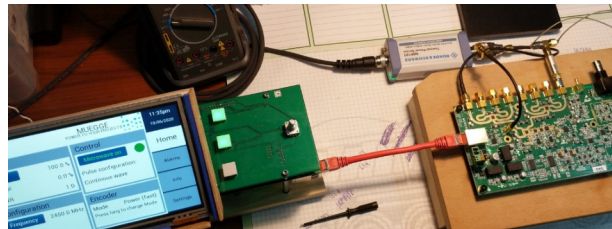
**Abb. 4:** Simulationsergebnisse für die Kopplungsstruktur zu den Leistungsmodulen mit jeweils zwei Mikrowellenhalbleiterchips à 250 W Mikrowellenausgangsleistung, welche über diese Kopplungsstruktur phasensynchron miteinander verschaltet sind

Auf dieser Grundlage wurden dann Prototypen für die neuartige Signaltreiberplatine sowie für die Leistungsmodulen mit jeweils zwei phasensynchron miteinander verschalteten Mikrowellenhalbleiterchips à 250 W Mikrowellenausgangsleistung aufgebaut. Die folgende

Abbildung 6 zeigt ein Detail des Prototyps der neuartigen Signaltreiberplatine für insgesamt acht Leistungsmodule mit jeweils 500 W Mikrowellenausgangsleistung (siehe Abb. 5 (a)) sowie den Prototyp der neuartigen Signaltreiberplatine im Testbetrieb für die Entwicklung der zugehörigen Steuerungssoftware (vergleiche Abb. 5 (b)).



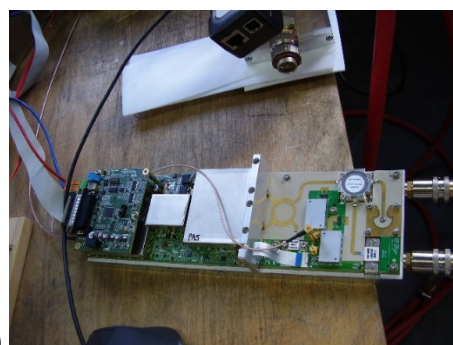
(a)



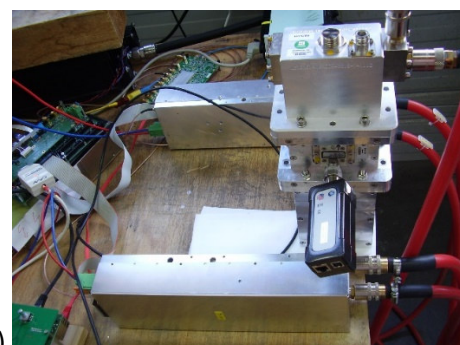
(b)

**Abb. 5 : (a) Detail des Prototyps der neuartigen Signaltreiberplatine für insgesamt acht Leistungsmodule mit jeweils 500 W Mikrowellenausgangsleistung; (b) Prototyp der neuartigen Signaltreiberplatine im Testbetrieb für die Entwicklung der zugehörigen Steuerungssoftware.**

In der nachfolgenden Abb. 6 (a) sind die in einem 500 W-Leistungsmodul verschalteten Platinen und in der Abb. 6 (b) der Testaufbau zur phasensynchronen Kopplung zweier 500 W-Leistungsmodule zu sehen.



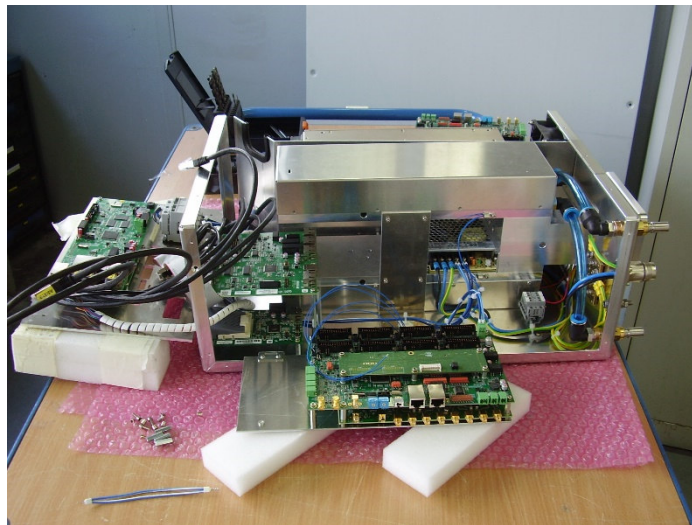
(a)



(b)

**Abb. 6: (a) Miteinander verschaltete Platinen in einem 500 W-Leistungsmodul und (b) Testaufbau zur phasensynchronen Kopplung zweier 500 W-Leistungsmodule.**

Der Testaufbau in Abb. 6 (b) bildet die Vorstufe zum 1 kW-Mikrowellenhalbleiternetzteil, welches als Prototyp aufgebaut wurde und in der folgenden Abb. 7 im geöffneten Zustand dargestellt ist.



**Abb. 7: Prototyp des nach dem neuen Konzept aufgebauten 1 kW-Mikrowellenhalbleiternetzteils in geöffnetem Zustand.**

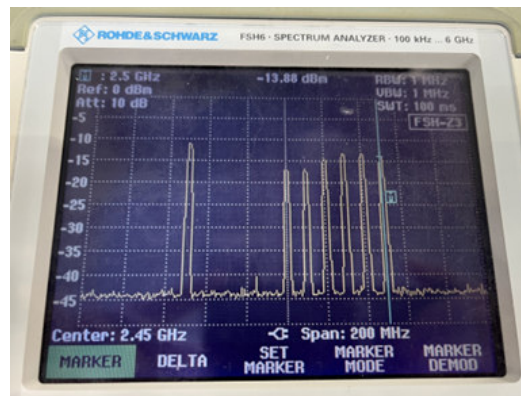
Die Funktionalitäten (insbesondere maximale Mikrowellenausgangsleistung, Frequenz der abgestrahlten Mikrowellen und deren Phasenlage sowie die maximale Mikrowellen-pulsfrequenz) des Prototyps dieses 2,45 Mikrowellenhalbleiternetzteils wurden intensiv getestet. Abb. 8 zeigt die Messung der tatsächlich abgestrahlten Mikrowellenausgangsleistung von 749 W bei den eingestellten Werten für die Mikrowellenfrequenz von 2425 MHz und für die Mikrowellenausgangsleistung von 750 W. Dabei wurde mit dem intern verbautem Messsystem eine reflektierte Leistung von 25 W gemessen. In einer Parallelmessung wurde mit einem Leistungsmessgerät (Power Meter) der Differenzwert von abgestrahlter und reflektierter Mikrowellenleistung zu 715 W bestimmt. Der gemessene Unterschied von 9 W zum vom Mikrowellenhalbleiternetzteil angezeigten Wert von 724 W (=749 W-25 W) liegt im Rahmen der Messungenauigkeit beider Systeme. Insgesamt zeigten die durchgeführten Messungen, dass die Mikrowellenausgangsleistung in 1 W-Schritten zwischen 0 W und 1000 W einstellbar ist.



**Abb. 8: Bedienpanel des Prototyps des Mikrowellenhalbleiternetzteils während der Tests zur Messung der maximal möglichen Mikrowellenausgangsleistung und der dabei gemessenen reflektierten Mikrowellenleistung.**

Mit einem Spektrumanalysator („Spectrum Analyzer“) konnte der Frequenzwert des Mikrowellenausgangssignals am Mikrowellenhalbleiternetzteil exakt bestätigt werden. Die mit dem Spektrumanalysator gemessenen Mikrowellenausgangssignale bei verschiedenen Frequenzen im

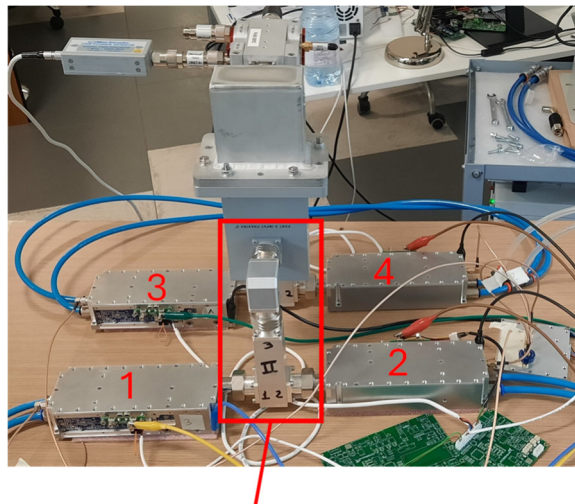
Bereich zwischen 2400 MHz und 2500 MHz zeigen in der Abb. 9 unterschiedliche Amplituden. Bei diesen Messungen war die an das Mikrowellenhalbleiternetzteil angeschlossene Last jeweils gleich. Damit zeigt das in der Abb. 9 dargestellte Ergebnis eine mehr oder weniger gute Anpassung der vom Mikrowellenhalbleiternetzteil bei unterschiedlichen Mikrowellenfrequenzen abgestrahlten Mikrowellenausgangssignale an die Impedanz der angeschlossenen Last. Damit konnte auch die Möglichkeit der optimierten Impedanzanpassung über die Variation der Mikrowellenausgangsfrequenz demonstriert werden.



*Abb. 9: Bedienpanel des Prototyps des Mikrowellenhalbleiternetzteils während der Tests zur Einstellung der Mikrowellenausgangsfrequenz im Bereich zwischen 2400 MHz und 2500 MHz (hier: Überlagerung mehrerer Mikrowellenausgangssignale bei den Frequenzen 2400 MHz (links), 2450 MHz, 2460 MHz, 2470 MHz, 2480 MHz, 2490 MHz und 2500 MHz (ganz rechts)).*

Die Tests zur Einstellung der Phasenlage des Mikrowellenausgangssignals am Mikrowellenhalbleiternetzteil ergaben, dass die Phasenlage im Bereich zwischen  $0^\circ$  und  $360^\circ$  einstellbar ist. Außerdem kann das Mikrowellenausgangssignal am Mikrowellenhalbleiternetzteil mit einer Pulsfrequenz von bis zu 50 kHz gepulst werden, während die maximale Pulsfrequenz bei einem Magnetron-basierten Mikrowellengenerator bei 1 kHz liegt.

Dann wurden weitere Anstrengungen unternommen, um die maximale Mikrowellenausgangsleistung für ein einzelnes 2,45 GHz-Halbleiternetzteil durch phasen-gleiches Zusammenschalten von insgesamt vier Halbleitermodulen auf bis zu 2 kW zu steigern. Die nachfolgende Abbildung 1 zeigt den Laboraufbau zum Test des neuen 2 kW-Halbleiternetzteils. Dabei sind die vier Halbleitermodule, welche eine maximale Mikrowellenausgangsleistung von jeweils 500 W aufweisen, mit den Zahlen 1 bis 4 gekennzeichnet. Die beiden 500 W-Halbleitermodule 1 und 2 sind dabei koaxial über einen Summenwellenleiter gekoppelt (in der Abb. 10 gekennzeichnet durch das rote Rechteck), ebenso wie die beiden 500 W-Halbleitermodule 3 und 4. Die beiden koaxialen Summenwellenleiter münden von gegenüberliegenden Seiten in einen Rechteckhohlleiter, welcher die zweite Stufe des Summenwellenleiters bildet. Die Herausforderung besteht darin, die vier 500 W-Halbleitermodule frequenz- und insbesondere phasensynchron zusammenzuschalten. Hierfür wurden bei Muegge Steuerungsplatinen entworfen und gebaut, welche in der Abbildung 1 am unteren Rand vor dem 500 W-Halbleitermodul 2 zu erkennen sind.



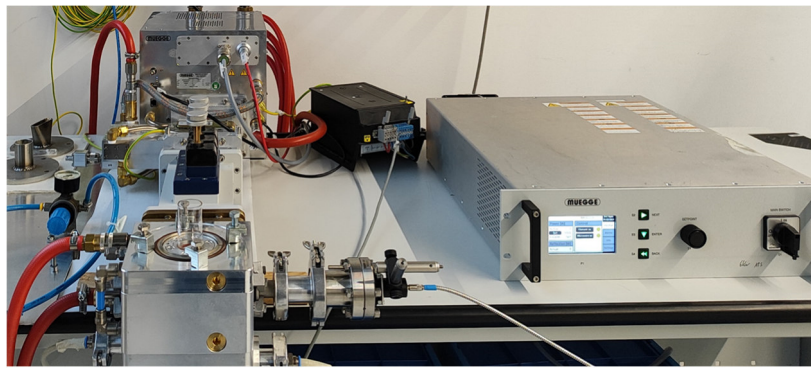
Koppelbereich von zwei Einzelwellenleitern  
zu einem Summenwellenleiter (Kombinator)

**Abb. 10: Laboraufbau zum Test des neuen 2 kW-Halbleiternetzteils, bestehend aus vier 500 W-Halbleitermodulen, welche über einen zweistufigen Summenwellenleiter (Kombinator) frequenz- und phasensynchron zusammenschaltet sind.**

Nach erfolgreichem Abschluss dieser ersten Tests wurde der zweistufige Summenwellenleiter in ein 19“-Gehäuse integriert. Die Mikrowellenausgangsleistung von maximal 2 kW wird über einen Rechteckhohlleiterausgang ausgegeben

Mit Bezug auf das Arbeitspaket AP 2 „Plasmadiagnostik“ und speziell auf das Unterarbeitspaket AP 2.3 „Prozessüberwachung“ wurden von Muegge mit dem spektroskopischen Plasmamonitoringsystem EMICON des Projektpartners PLASUS spektroskopische Untersuchungen durchgeführt. Ziel der spektroskopischen Untersuchungen von Muegge war es, mit Hilfe der Simulationssoftware „massiveOES“ die Gastemperatur von Plasmen aus den aufgenommenen optischen Emissionsspektren zu ermitteln. Das spektroskopische Plasmamonitoringsystem EMICON des Projektpartners PLASUS – im Folgenden als EMICON-Spektrometer von PLASUS bezeichnet – zeichnet optische Emissionsspektren im Spektralbereich zwischen 200 nm und 1100 nm auf. Erste Spektren wurden von Niederdruckplasmen gemacht, welche z. B. bei der Dekapsulierung von Mikrochips eingesetzt werden. Diese Niederdruckplasmen sind umso effizienter, je mehr Sauerstoffradikale damit erzeugt werden können. Hinsichtlich der Sauerstoffradikale, welche mit der später durchzuführenden optischen Emissionsspektroskopie am Plasma des Mikrowellen-Plasmareaktors von Muegge bei Atmosphärendruckbedingungen ebenfalls zu detektieren und zu analysieren sein werden, zeigten sich diese ersten Tests mit dem EMICON-Spektrometer von PLASUS als sehr aussagekräftig.

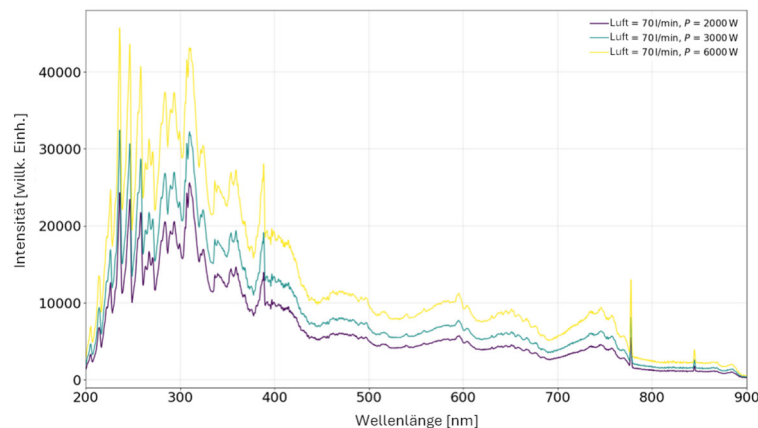
Spektroskopische Untersuchungen mit dem EMICON-Spektrometer von PLASUS wurden danach auch an Luftplasmen durchgeführt, welche mit dem Mikrowellen-Plasmareaktor von Muegge bei Atmosphärendruckbedingungen erzeugt wurden. Der entsprechende Versuchsaufbau ist in der nachfolgenden Abb. 11 dargestellt. Der Mikrowellen-Plasmareaktor weist seitlich einen optischen Zugang auf. Über diesen wurde der optische Kollimator an den Mikrowellen-Plasmareaktor angeflanscht



**Abb. 11: Versuchsaufbau für die Ermittlung der Gastemperatur von Atmosphärendruckplasmen mittels optischer Emissionsspektroskopie an Plasmen, die mit dem Mikrowellen-Plasmareaktor von Muegge unter Atmosphärendruckbedingungen erzeugt wurden.**

Mit dem EMICON-Spektrometer von PLASUS wurden optische Emissionsspektren von Luftplasmen unter Atmosphärendruckbedingungen aufgenommen, welche mit dem Mikrowellen-Plasmareaktor bei unterschiedlichen Durchflussraten von Luft erzeugt wurden, wobei die Mikrowellenleistung im Bereich zwischen 2 kW und 6 kW variiert wurde. Die für die Durchflussrate von 70 slm (d. h. Liter pro Minute bei Standardbedingungen von  $T = 20^\circ\text{C}$ ) aufgenommenen optischen Emissionsspektren von Luft sind in der folgenden Abb. 12 über den Spektralbereich von 200 nm bis 900 nm dargestellt. Die Abb. 12 zeigt einen Anstieg der Intensität der optischen Emissionsspektren über den gesamten Spektralbereich von 200 nm bis 900 nm infolge der Erhöhung der Mikrowellenleistung von 2 kW über 3 kW bis zu 6 kW.

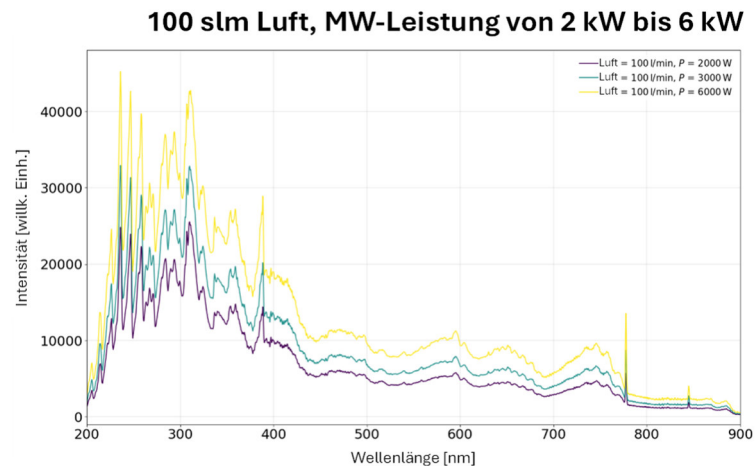
#### 70 slm Luft, MW-Leistung von 2 kW bis 6 kW



**Abb. 12: Ausschnitte der optischen Emissionsspektren eines Luftplasmas unter Atmosphärendruckbedingungen bei Variation der Mikrowellenleistung, wobei die Durchflussrate von Luft bei 70 slm konstant gehalten wurde.**

In der nachfolgenden Abb. 13, welche die optischen Emissionsspektren der Luft-plasmen bei der Durchflussrate von 100 slm zeigt, ist ein nahezu identischer Anstieg der Intensitäten der optischen Emissionsspektren über den gesamten Spektralbereich von 200 nm bis 900 nm infolge der Erhöhung der Mikrowellenleistung von 2 kW über 3 kW bis zu 6 kW zu erkennen. Der direkte Vergleich der optischen Emissionsspektren bei gleicher Mikrowellenleistung, jedoch unterschiedlicher Durchflussrate in den beiden Abb. 12 und 13 lässt im Unterschied zur Variation

der Mikrowellenleistung allerdings keine nennenswerten Abweichungen in der Intensität erkennen. Die jeweiligen optischen Emissions-spektren für die beiden Werte von 70 slm und 100 slm für die Durchflussrate von Luft bei gleicher Mikrowellenleistung sind nahezu identisch. Dies gilt für alle drei Mikrowellen-leistungen von 2 kW, 3 kW sowie 6 kW. Demzufolge hat die eingestrahelte Mikrowellen-leistung offensichtlich einen signifikanten Einfluss auf die Intensität der optischen Emissionsspektren, während der Einfluss der Durchflussrate von Luft auf die Intensität der Luftspektren nicht nennenswert zu sein scheint.



**Abb. 13: Ausschnitte der optischen Emissionsspektren eines Luftplasmas unter Atmosphärendruckbedingungen bei Variation der Mikrowellenleistung, wobei die Durchflussrate von Luft bei 100 slm konstant gehalten wurde.**

Insbesondere die in den Abbildungen 12 und 13 dargestellten Ergebnisse der optischen Emissionsspektroskopie für die Leistungsvariation bei Luftplasmen unter Atmosphärendruckbedingungen zeigen das Funktionieren des Regelungskonzepts zur Bereitstellung der optimalen Mikrowellenleistung auf Basis der Daten der optischen Emissionsspektroskopie.

- Arbeitspaket AP3.3 – Energieversorgung - Mikrowellenleistungsmodulation

#### Kurze Beschreibung der Ziele des Arbeitspaketes

Basierend auf AP3.1 und AP3.2 werden detaillierte Untersuchungen zur Mikrowellenleistungsmodulation für die energieeffiziente Reaktionssteuerung des Massenflusses in Abhängigkeit des Konversionsfaktors und des Energie-zu-Molekül-Verhältnisses durchgeführt. Das in AP3.2. grundsätzlich untersuchte Regelungskonzept wird weiterentwickelt und in die automatische Anlagensteuerung eingebunden.

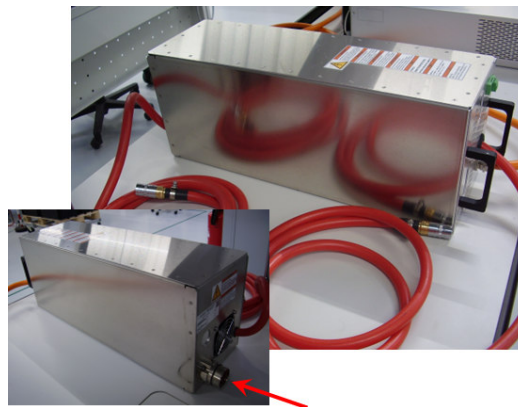
#### Im Arbeitspaket AP 3.3 erzielte Ergebnisse

Die beim Projektkoordinator IGVP und beim Projektpartner Fraunhofer IGB durchgeführten Experimente zeigten kurzzeitige, pulsartige Leistungsüberhöhungen beim Betrieb der jeweiligen Plasmabrenner mit den 6 kW Standardnetzteilen zur Erzeugung der Hochspannung für ein 6 kW-Magnetron. Diese Leistungsüberhöhungen sorgten für entsprechende Temperaturpeaks bei der CO<sub>2</sub>-Pyrolyse mit den Plasmabrennern, wobei die Hohlfasermembranen aus Keramik ebenfalls

kurzzeitig überhitzt wurden. Diese pulsartigen Leistungsüberhöhungen waren auf Störfrequenzen im akustischen Frequenzbereich aus dem Versorgungsnetz zurückzuführen.

Um zukünftig eine homogene Mikrowelleneinspeisung in die Plasmabrenner ohne diese pulsartigen Leistungsüberhöhungen zu erreichen, wurde von Muegge ein Netzfilter zur Blindleistungskompensierung (power factor compensation, PFC) entwickelt und aufgebaut, mit dem die bestehenden 6 kW Standardnetzteile auferüstet und umgebaut werden konnten.

Die Abb. 14 zeigt das neu entwickelte Netzfilter zur Blindleistungs-kompensierung, wobei der rote Pfeil auf die Buchse weist, über die das dreiphasige Netzkabel an das Netzfilter angeschlossen wird. Hinter dem Netzfilter befindet sich das umgebaute 6 kW Standardnetzteil. Schließlich wird vom umgebauten 6 kW Standardnetzteil die Hochspannung erzeugt, mit der das 6 kW Magnetron versorgt wird, welches auf diese Weise „ripple-freie“ Mikrowellen erzeugen kann, die nicht mehr länger mit Oberwellen im akustischen Bereich moduliert sind.

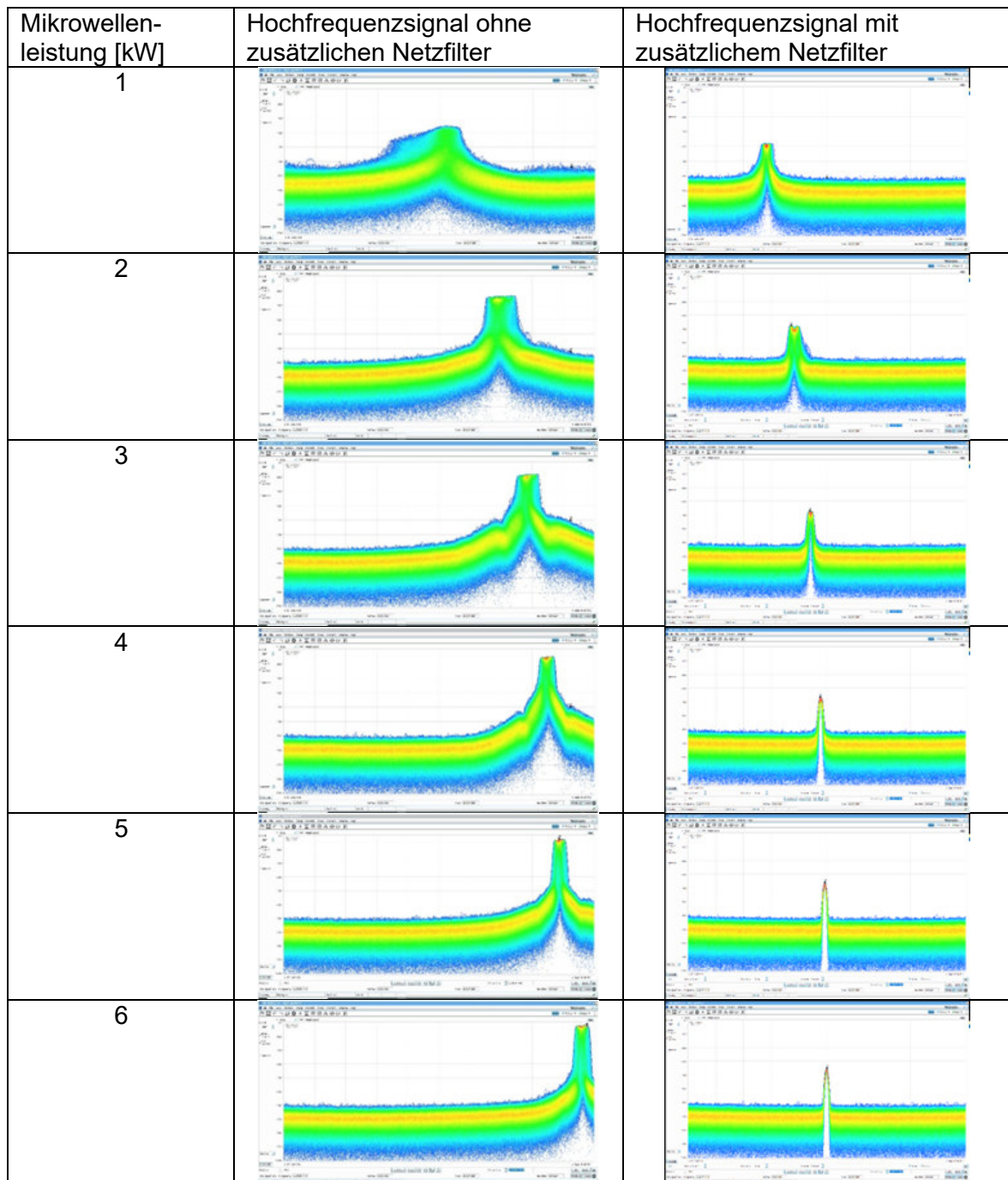


**Abb. 14:** Seitansichten des von Muegge neu entwickeltes Netzfilter zur Blind-leistungskompensierung. Das dreiphasige Netzkabel wird an die durch den roten Pfeil bezeichnete Buchse angeschlossen.

In Tab. 1 sind die Hochfrequenzsignale für das 6 kW Netzteil ohne und mit zusätzlichem Netzfilter gegenübergestellt. Dabei ist zu erkennen, dass das Signal-zu-Rausch-Verhältnis mit zunehmender Mikrowellenleistung immer besser wird. Mit zunehmender Mikrowellen-leistung verschiebt sich die Resonanzfrequenz des Magnetrons – im unteren Leistungsbereich ab 1 kW stärker und im oberen Leistungsbereich bis zu 6 kW zunehmend langsamer – hin zu größeren Frequenzen. Diese Verschiebung der Resonanzfrequenz ist beim Hochfrequenzsignal ohne zusätzlichen Netzfilter stärker ausgeprägt. Außerdem ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis für vergleichbare Leistungswerte beim Hochfrequenz-signal ohne zusätzlichen Netzfilter deutlich schlechter (zu erkennen an der Breite des jeweiligen Resonanzpeaks) als beim Hochfrequenzsignal mit zusätzlichen Netzfilter.



Tab. 1: Vergleich der Hochspannungssignale mit und ohne zusätzlichen Netzfilter in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung.



Insgesamt konnte durch das Vorschalten des neuen Netzfilters vor das umgebaute 6 kW Netzteil der Anteil an Oberwellen im akustischen Frequenzbereich im Hochfrequenzspektrum sehr stark verringert werden. Dadurch weist das Mikrowellenausgangssignal, mit dem der Plasmabrenner gespeist wird, deutlich geringere Modulationen auf, so dass das Mikrowellenausgangssignal mit zusätzlichem Netzfilter deutlich konstanter ist als ohne zusätzlichen Netzfilter, wodurch die zuvor

aufgetretenen, kurzzeitigen und pulsartigen Leistungsüberhöhungen beim Betrieb der Plasmabrenner beim Projektkoordinator IGVP und beim Projektpartner Fraunhofer IGB vermieden werden können.

Um das Regelungskonzept in die automatische Anlagensteuerung einbinden zu können, wurde einer speicherprogrammierbaren Steuerung (SPS) entwickelt. Für eine umfassende Regelung mit der SPS muss die vollständige Kommunikation mit dem Schaltnetzteil, mit den Massenflussreglern für die Arbeitsgase, mit der pneumatischen Regelung für die Plasmazündvorrichtung sowie mit externen Regelvorrichtungen (insbesondere auf Basis der Daten der optischen Emissionsspektroskopie) in die SPS integriert werden.

In einem ersten Schritt wurden die verschiedenen Kommunikationsschnittstellen des Schaltnetzteils in die SPS integriert. Das Schaltnetzteil versorgt das Magnetron mit der Versorgungsspannung, mit der Anodenspannung und dem Anodenstrom sowie mit dem Strom für die Heizkathode. Die Kommunikationsschnittstellen befinden sich auf der Rückseite des Schaltnetzteils. Standardmäßig ist das Schaltnetzteil mit einer CAN-Schnittstelle ausgerüstet. Die Statusmeldungen von Magnetronkopf und Schaltnetzteil werden bei der CAN-Schnittstelle mittels vier verschiedener Sendetelegramme übermittelt. Zu den Statusmeldungen gehören neben dem Status von Mikrowellenheizung, Anodenspannung und Mikrowelle sowie dem aktuellen Istwert der Mikrowellenausgangsleistung entsprechend den über das Empfangstelegramm gesendeten Steuerbefehlen insbesondere der aktuelle Wert der reflektierten Mikrowellenleistung – gemessen mit einem Richtkoppler –, die Temperatur am Kühlwasserzufluss sowie am -abfluss, die Temperatur des Magnetrons, aber auch die vorherrschende Luftfeuchtigkeit (die bei zu hohen Werten zur Bildung von Bogenentladungen im Wellenleiter führen kann, welche dann Richtung Magnetron laufen und im schlimmsten Fall das Magnetron zerstören können) sowie die damit verbundenen Alarm- und Fehlermeldungen. Im Anschluss an die Implementierung der verschiedenen Kommunikationsschnittstellen des Schaltnetzteils wurde in die SPS noch die Kommunikation mit den Massenflussreglern für die Arbeitsgase, mit der pneumatischen Regelung für die Plasmazündvorrichtung sowie mit externen Regelvorrichtungen (insbesondere auf Basis der Daten der optischen Emissionsspektroskopie) aufgenommen. Mit der SPS konnte im Plasmalabor von Muegge in Reichelsheim die Zufuhr von Luft als Arbeitsgas über einen Massenflussregler, die mit dem Einschalten der Mikrowelle automatisch zu erfolgende Zündung des Luftplasmas im Mikrowellen-Plasmareaktor sowie die Mikrowellenleistung über das Schaltnetzteil geregelt werden. Die erfolgreiche Zündung des Plasmas wurde dabei mit Hilfe einer Fotodiode, deren Statusmeldungen ebenfalls mit der SPS verarbeitet werden, verifiziert.

Demzufolge besitzt die SPS aktuell bereits alle Funktionalitäten, damit ein oder sogar auch mehrere Mikrowellen-Plasmareaktoren parallel entsprechend der Verfügbarkeit von nachhaltig erzeugter elektrischer Energie automatisiert gezündet und betrieben werden können.

## II.2 Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

- **Aufwendungen für Personal**

Bei allen drei Arbeitspaketen AP 3.1 „Aufbau des Plasmabrenners“, AP 3.2 „Energie-Regelungskonzept“ und AP 3.3 „Mikrowellenleistungsmodulation“ arbeiteten Wissenschaftler (bzw. Akademiker), Entwicklungsingenieure und Techniker Hand in Hand. Insbesondere die Arbeiten zum Arbeitspaket AP3.2 stellte sich als zeitaufwändig heraus, so dass hierfür leicht mehr Personalressourcen eingesetzt werden mussten als ursprünglich geplant.

- **Verbrauchsmaterialien**

Verbrauchsmaterial wie Elektronikkomponenten (z.B. für Festkörpergeneratoren und PFC), mechanische Komponenten für die APS-Experimente (Bauteile, Quarzröhre, Vakuumteile, ...) wurden gekauft und für die verschiedenen Arbeitspakete verwendet.

## II.3 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeit

Der Ausgangspunkt des NexPlas-Projekts war der Technologielevel TRL4 des Kopernikus-Satellitenprojekts PiCK. Als Ziel wurde Kombination des Kohlenstoffträgers Kohlenstoffmonoxid CO mit dem „grünen Wasserstoff“ H<sub>2</sub> zur Basischemikalie Methanol angestrebt.

Die Vereinigung von CO und H<sub>2</sub> zum flüssigen Methanol hat großes Potenzial. Flüssiges Methanol besitzt eine sehr hohe Energiespeicherdichte und kann mit vorhandener Infrastrukturtechnik für Transport und Speicherung gehandhabt werden. Es steht als Zwischenprodukt der chemischen Industrie, Kraftstoffzusatz und für die Rückverstromung über Direkt-Methanol-Brennstoffzelle DMFC zur Verfügung.

Aufgrund des hohen Innovationspotenzials sollte dieses Verfahren im Projekt NexPlas unbedingt untersucht und erforscht werden. Es war aber auch mit einem hohen technischen-wissenschaftlichen Risiko verbunden, welches eine direkte Umsetzung in industrieller Forschung ohne öffentliche Förderung schwierig machte.

Die Durchführung der Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf diesem vielversprechenden Gebiet konnte allerdings keiner der Partner, insbesondere die beiden Universitätsinstitute IGVP und MR-TUDa sowie das Fraunhofer-Institut IGB, vollständig aus eigenen Mitteln finanzieren, was eine öffentliche Förderung notwendig machte.

## II.4 Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere der Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans

MUEGGE GmbH hat mit den neuentwickelten, innovativen Mikrowellengeneratoren und Plasmasystemen seine Stellung bei den Plasma- und Mikrowellenanwendungen deutlich gestärkt und kann damit auch neue, für MUEGGE als strategisch wichtig eingestufte Anwendungsfelder erschließen. Dies führte einerseits zu kundenorientierten Innovationen und kontinuierlichen Produktverbesserungen sowie zu kommerziell neuartigen Produkten, welche schließlich nachhaltig zur Sicherung und dem Ausbau von Arbeitsplätzen bei Muegge beitragen.

## **II.5 Während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordener Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen**

Aus der durchgeführten aktuellen Informationsrecherche sind während der Projektlaufzeit von „NexPlas“ keine Erkenntnisse hinsichtlich F&E-Ergebnissen Dritter bekannt geworden, die für das Teilvorhaben „Energieversorgung“ von Muegge von Bedeutung gewesen wären.

## **II.6 Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses nach Nr. 5 der NKBF**

Muegge verbreitete die im Projekt „NexPlas“ erworbenen Erkenntnisse durch regelmäßige Teilnahmen an Industrieausstellungen und Messen, insbesondere im Bereich der Plasmatechnologie. Einige der Veranstaltungen sind nachfolgend aufgeführt:

- World Hydrogen North America, 15.-17.05.2023 and 21.-23.05.2024, Houston, USA
- International Microwave Symposium (IMS), 11.-16.06.2023, San Diego, USA
- Electrical Energy Storage (EES) Europe, 14.-16.06.2023, München
- 57<sup>th</sup> and 58<sup>th</sup> Annual Microwave Power Symposium (International Microwave Power Institute, IMPI), 27.-29.06.2023, Denver, USA and 29.-31.05.2024, Suburban Washinton DC, USA
- AMPERE 2023, 11.-14.09.2023, Cardiff, Großbritannien
- World Hydrogen Congress, 10.-12.10.2023, Rotterdam, Niederlande and 01.-02.10.2024, Kopenhagen, Dänemark
- Plasma Tech 2024, 17.-19.04.2024, Wien, Österreich