

Flüssigkeitsbrücken und Selbstorganisation in zweidimensionalen Partikelsystemen im ESEM

**Dissertation
zur Erlangung eines Doktorgrades**

in der
Fakultät für Maschinenbau und Sicherheitstechnik
der
Bergischen Universität Wuppertal

vorgelegt von
Felix Schröter
aus Solingen

Wuppertal 2016

Wuppertaler Reihe zur Umweltsicherheit

Felix Schröter

**Flüssigkeitsbrücken und Selbstorganisation
in zweidimensionalen Partikelsystemen im ESEM**

Shaker Verlag
Aachen 2016

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Zugl.: Wuppertal, Univ., Diss., 2016

Copyright Shaker Verlag 2016

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-4641-0

ISSN 1861-1001

Shaker Verlag GmbH • Postfach 101818 • 52018 Aachen

Telefon: 02407 / 95 96 - 0 • Telefax: 02407 / 95 96 - 9

Internet: www.shaker.de • E-Mail: info@shaker.de

Vorwort

Die vorliegende Arbeit ist während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter im Fachgebiet Sicherheitstechnik/Umweltschutz an der Bergischen Universität Wuppertal in den Jahren 2010 bis 2016 entstanden.

Danken möchte ich vor allen anderen Herrn Professor Dr.-Ing. habil. Eberhard Schmidt für die Bereitstellung des Themas, der Freiheiten in der Ausgestaltung der Forschung, das in mich gesetzte Vertrauen und die lehrreiche Betreuung während der Promotion. Für Fragen, motivierende Ratschläge und hilfreiche Diskussionen war er immer erreichbar.

Neben ihm danke ich Herrn Professor Dr. rer. nat. Joachim Marzinkowski für die Erstellung des zweiten Gutachtens. Frau Professorin Dr.-Ing. habil. Anke Kahl sowie PD Dr.-Ing. habil. Achim Dittler möchte ich für die Komplettierung meiner Prüfungskommission danken.

Ein großer Dank geht an meine aktuellen und ehemaligen Kollegen im Fachgebiet für die sehr konstruktive und angenehme Arbeitsatmosphäre. Im Besonderen möchte ich Frau Heike Kloke-Affeld, Herrn Matthias Kaul und Herrn Tobias Quadt danken, die mich in das Fachgebiet „gelockt“ und am längsten begleitet haben. Herr Gerwin Ciesinski verdient meinen Dank für die Durchführung der Versuche und technische Hilfe mit dem ESEM.

Danken möchte ich an dieser Stelle weiterhin Herrn Stefan Griwenka, der mich bei meiner Forschung als mutiger Studierender mit seiner Masterthesis unterstützt hat. Für die nicht minder wichtigen Recherchen und Laborarbeiten danke ich Frau Mathilde Cheynet und Frau Silvia Schlepper.

Für die kritische Durchsicht meines Manuskriptes bedanke ich mich unter anderem bei Herrn Kai Vaupel, Herrn Sebastian Bärz und Frau Sylvia Bach.

Nicht vergessen werden soll der Dank an meine Eltern und meinen Bruder sowie meine Freunde, die mir vor allem mit moralischem Zuspruch Rückhalt gegeben haben.

Solingen im Juli 2016,

Felix Schröter

Zusammenfassung

Pulver und Schüttgüter sind aus vielen industriellen Prozessen und dem Alltag der Endverbraucher nicht wegzudenken. Der Umgang mit dieser speziellen schüttfähigen Form von Feststoffen benötigt viele Kenntnisse über seine Eigenschaften und sein Verhalten. Die Aufnahme von Umgebungsfeuchte und daraus resultierende makroskopischen Änderungen betreffen den gesamte Lebenszyklus eines Pulvers oder Schüttgutes. Die sichtbaren Eigenschaftsänderungen lassen sich auf mikroskopische Vorgänge zurückführen.

Die Arbeit ist der Beobachtung der Bildung von Flüssigkeitsbrücken und der Organisation von Partikelsystemen unter dem Einfluss kondensierender Feuchtigkeit auf mikroskopischer Ebene gewidmet. Diese Prozesse konnten erstmalig mit einem Rasterelektronenmikroskop (REM) betrachtet und beschrieben werden. Hierfür kommt ein modifiziertes REM zum Einsatz, welches Wasser auf der Probe kondensieren lassen kann - das environmental scanning electron microscope (ESEM).

Neben der Untersuchung verschiedener Materialien, Partikelformen und Partikelgrößen steht die Prüfung der Einsatzmöglichkeiten des ESEM für die Untersuchung dynamischer Vorgänge mit Pulvern unter Feuchteeinfluss im Mittelpunkt. Die Fragen welche Experimente insitu möglich sind und wie diese vorbereitet werden müssen werden in dieser Arbeit behandelt. Ebenso werden Abschätzungen zu den Einflüssen auf die Versuchsanordnungen zur Betrachtung und Vermessung von Partikeln und Partikelsystemen unter Feuchteeinfluss vorgenommen. Das ESEM ermöglicht zeitlich und örtlich hohe Auflösungen, welche die Untersuchung und Vermessung von Flüssigkeitsbrücken zwischen Partikeln ermöglichen. Kritisch hinterfragt werden die Messung der geometrischen Parameter der Brücken ebenso wie der Versuch die Haftkräfte zwischen den Partikeln zu bestimmen.

Der Wechsel des Bindemittels Wasser zu einer alternativen Substanz wird in dieser Arbeit durch eine umfangreiche Recherche vorbereitet. Fünf potentielle Kandidaten sind gefunden worden, deren Einsatz in zukünftigen Versuchen geprüft werden soll. Das Einbringen von löslichen Stoffen zur Modifikation der Bindemittelseigenschaften wird als alternative Form der Bindemittelsubstitution behandelt.

Trotz aller thermischen, elektrischen und chemischen Einflüsse auf die Experimente lassen sich viele Rückschlüsse auf das Verhalten der Partikelsysteme und die relevanten Einflüsse während deren Beobachtung ziehen.

Diese Arbeit ist daher als Ausgangspunkt für viele weitere Untersuchungen von Teilaspekten und aufgetretenen Phänomenen gedacht. Sie gibt Handlungsempfehlungen, stellt Probleme dar, beschreibt deren Lösung und zeigt viele Möglichkeiten auf mit dem ESEM die Forschung im Bereich der Partikeltechnologie weiter voran zu bringen.

Abstract

Industrial processes and our everyday life cannot be imagined without powders and bulk materials. Handling of disperse materials requires knowledge of its properties and behaviour during the whole process. Especially interesting is the absorption of water from humid environments. Resulting changes can affect the whole life cycle of any powder or bulk material. Visible alterations of properties can often be ascribed to microscopic events.

This dissertation is devoted to the observation of liquid bridges between particles and their formation as well as the organisation of particle systems during condensation on a microscopic level. Witnessing and describing condensation processes in particulate systems with a special scanning electron microscope is new. To allow this with high spatial and temporal resolution the environmental scanning electron microscope (ESEM) is deployed. Measurements of geometrical properties and forces between particles under the influence of condensate are discussed in particular. Some situations are described mathematically.

Beside the variation of particle-material, -size and -form, testing the device itself for this kind of endeavour is in the scope of the research. The questions which experiments are feasible in situ and how they have to be prepared are discussed in this work among many other practical aspects. Influencing factors on wet particle systems are identified and quantified if possible.

Substituting water as the binding agent has led to a substantial investigation of potential candidates. Five chemicals could be identified, that have to be tested in future studies. Alternatively the modification of condensed water with surfactant is presented.

In spite of all thermic, electric and chemical influences on the samples many helpful conclusions could be drawn on the behaviour of the particles and particulate systems.

As it can be stated that the ESEM qualifies for the intended studies this work can be seen as a starting point of ongoing research of separate aspects and phenomena that appeared during the creation of this dissertation. Itself it provides advice, illustrates problems and solutions and is meant to inspire further research with the ESEM in the field of particle technology.

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----------|
| Abbildungsverzeichnis | VII |
| Tabellenverzeichnis | XII |
| Formelzeichen- und Abkürzungsverzeichnis | XIII |
| 1 Einleitung und Zielstellung | 1 |
| 1.1 Einleitung | 1 |
| 1.2 Zielstellung | 3 |
| 2 Theoretische Grundlagen | 5 |
| 2.1 Phasen und Phasenübergänge | 5 |
| 2.1.1 <i>Zustände und Phasen</i> | 5 |
| 2.1.2 <i>Übergang von der flüssigen in die gasförmige Phase</i> | 5 |
| 2.1.3 <i>Übergang von der gasförmigen in die flüssige Phase</i> | 7 |
| 2.2 Energetische Beschreibung von Oberflächen | 8 |
| 2.3 Kontaktwinkel und Benetzung | 9 |
| 2.4 Kapillarität, Kapillardruck und Kapillarkondensation | 12 |
| 3 Grundlagen zu Flüssigkeitsbrücken | 18 |
| 3.1 Einordnung der Flüssigkeitsbrücke in die Haftkräfte | 18 |
| 3.2 Flüssigkeitsbrücken | 22 |
| 3.2.1 <i>Arten von Flüssigkeitsbrücken</i> | 22 |
| 3.2.2 <i>Entstehung von Flüssigkeitsbrücken</i> | 24 |
| 3.2.3 <i>Stabilität von Flüssigkeitsbrücken</i> | 26 |
| 3.2.4 <i>Vergleich der Haftkräfte</i> | 28 |
| 4 Modelle zur Statik von Flüssigkeitsbrücken | 31 |
| 5 Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM) | 42 |
| 5.1 Grundlagen der Mikroskopie mit dem ESEM | 42 |
| 5.1.1 <i>Kurzgefasste Geschichte der Rasterelektronenmikroskopie</i> | 42 |
| 5.1.2 <i>Grundlagen der Elektronenoptik und Signalerzeugung</i> | 42 |
| 5.1.3 <i>Aufbau eines ESEM</i> | 47 |
| 5.1.4 <i>Stellglieder und Einflussgrößen auf das Bild</i> | 52 |
| 5.2 Der ESEM-Modus | 54 |
| 5.3 Einflüsse auf Proben im ESEM-Modus | 60 |
| 5.3.1 <i>Einflüsse auf die Proben durch das Vakuumsystem</i> | 60 |
| 5.3.2 <i>Einflüsse auf die Proben durch den Elektronenstrahl</i> | 62 |
| 6 Experimentelle Arbeiten | 71 |
| 6.1 Versuchsmaterialien | 71 |
| 6.2 Versuchsanlage und Komponenten | 78 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 6.2.1 | <i>Das Quanta 450 FEG im Überblick</i> | 78 |
| 6.2.2 | <i>Versuchsaufbauten</i> | 82 |
| 6.2.3 | <i>Sedimentationsverfahren zum Aufbringen der Partikeln</i> | 86 |
| 6.3 | Versuchsdurchführung Brückenbildung | 87 |
| 6.3.1 | <i>Brückenbildung unter Variation des Bindemittels</i> | 87 |
| 6.3.2 | <i>Brückenbildung unter Variation von Druck und Temperatur</i> | 101 |
| 6.4 | Bildbearbeitung | 108 |
| 7 | Experimentelle Ergebnisse | 110 |
| 7.1 | Ergebnisse aus Versuchen zur Brückenbildung unter Variation des Bindemittels | 110 |
| 7.1.1 | <i>Darstellung der Ergebnisse aus den Versuchen zur Brückenbildung unter Variation des Bindemittels</i> | 110 |
| 7.1.2 | <i>Auswertung der Ergebnisse aus den Versuchen zur Brückenbildung unter Variation des Bindemittels</i> | 131 |
| 7.2 | Ergebnisse aus Versuchen zur Brückenbildung unter Variation der relativen Feuchte | 144 |
| 7.2.1 | <i>Darstellung der Ergebnisse aus den Versuchen zur Draufsicht</i> | 144 |
| 7.2.2 | <i>Auswertung der Ergebnisse aus den Versuchen zur Draufsicht</i> | 179 |
| 7.3 | Ergebnisse aus den Versuchen zur Brückenbildung unter Variation der relativen Feuchte in der seitlichen Ansicht | 195 |
| 7.3.1 | <i>Darstellung der Ergebnisse aus den Hochkant-Versuchen</i> | 195 |
| 7.3.2 | <i>Auswertung der Ergebnisse aus den Hochkant-Versuchen</i> | 227 |
| 8 | Zusammenfassung, Diskussion und Ausblick | 245 |
| 8.1 | Zusammenfassung der Ergebnisse | 245 |
| 8.2 | Diskussion und Ausblick | 251 |
| | Schrifttum | 254 |
| | Anhänge | 263 |