

5 Aufbau der Versuchsanlage

Um die in Abschnitt 4 beschriebenen Mikrostrukturapparate zu betreiben wurde eine Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten aufgebaut. Aus Sicherheitsgründen wurde diese Anlage in eine Flowbox (stetiger Volumenstrom von $150 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ Luft) mit Spritzschutzwänden aus Edelstahl integriert.

Ein Flußbild des Gesamtaufbaus der Versuchsanlage ist in Abbildung 5-1 dargestellt. Die Abbildungen 5-2 und 5-3 zeigen Photos der Anlage. Die in der Abbildung 5-1 dargestellten Bezeichnungen werden in den Beschreibungen in Abschnitt 5.1 verwendet. Alle im folgenden benannten Sensoren und Aktuatoren werden in Abschnitt 5.4 ausführlich beschrieben.

5.1 Aufbau der Kühlmedienversorgung

Aus einer Vorlage von 50 kg wird mittels einer Dreifach-Membranpumpe deionisiertes Wasser durch Schottverschraubungen und einen Metallsinterfilter in den Kühlkreislauf gepumpt. Der Kühlkreislauf ist aus Edelstahlrohren mit einem Durchmesser von 8 mm aufgebaut. Die Hubfrequenz der Pumpe wird mittels eines Frequenzstellers Siemens Micromaster S420 gesteuert, der über eine RS232-Schnittstelle mit dem Meß- und Regelprogramm für die Versuchsanlage verbunden ist.

Die Pumpe ist mit einem gasgefüllten Membran-Pulsationsdämpfer versehen, so daß keine messbaren Pulsationen in der Versuchsanlage auftreten. Ein Metallsinterfilter mit einer Maschenweite von $20 \text{ }\mu\text{m}$ filtert eventuell vorhandene Partikel aus dem deionisierten Wasser aus.

Um versehentliche Beschädigungen in der Kühlmittleitung durch zu hohen Förderdruck zu vermeiden, sind in die Zuleitung des Kühlmittelkreises zwei Überströmventile integriert. Das erste Ventil öffnet bei einem Maximaldruck von 1,4 MPa, das zweite bei 1,8 MPa. Ein ölgedämpfter Druckanzeiger P3 dient zur schnellen visuellen Kontrolle des Drucks im Kühlmittelzulauf.

Beide Überströmventile verbinden den Vorlauf des Kühlmittels mit dem Rücklauf und leiten so im Notfall das Kühlmittel direkt in den Auffangbehälter einer mobilen Rückkühleinheit Lauda WK1400. Ein Druckaufnehmer P2 dient über ein elektronisches Anzeigegerät als Sicherheitseinrichtung, die Funktion dieser Einrichtung wird in Abschnitt 5.7 ausführlich beschrieben.

Über eine Kombination von gegeneinander verschalteten, pressluftgetriebenen, elektronisch gesteuerten Magnetventilen MV2 und MV3 wird, je nach Steuerzustand des Regelprogramms, das Kühlmedium entweder in Richtung der Kühlpassage des Mikrostrukturapparates oder mittels einer Bypassleitung am Mikrostrukturapparat vorbei geleitet. MV2 ist dabei ein Ventil des Typs „normally closed“, während MV3 vom Typ „normally open“ ist, so daß im Notfall das Kühlmedium immer am Mikrostrukturapparat vorbei geleitet wird und keine Schäden durch den hohen Förderdruck entstehen können.

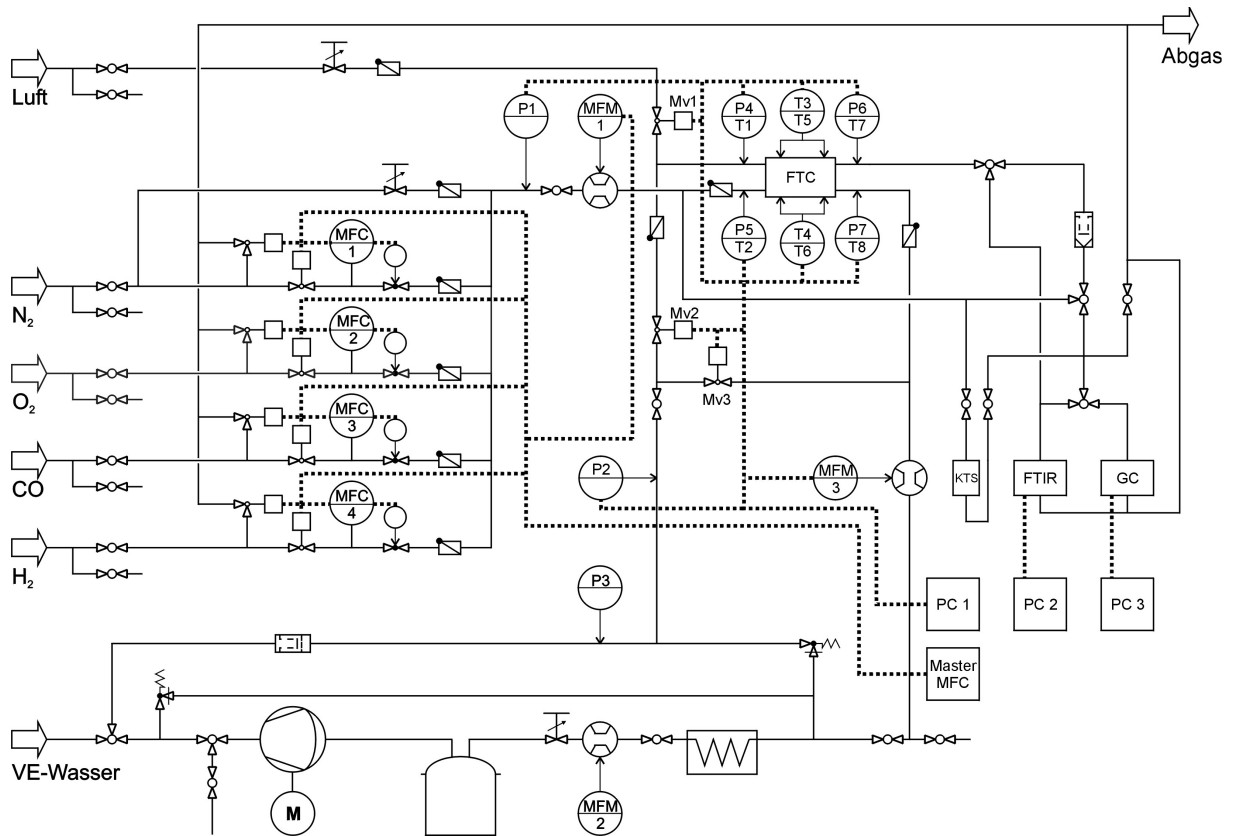


Abb. 5-1 Prinzipfließbild der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* chemischer Reaktionen.

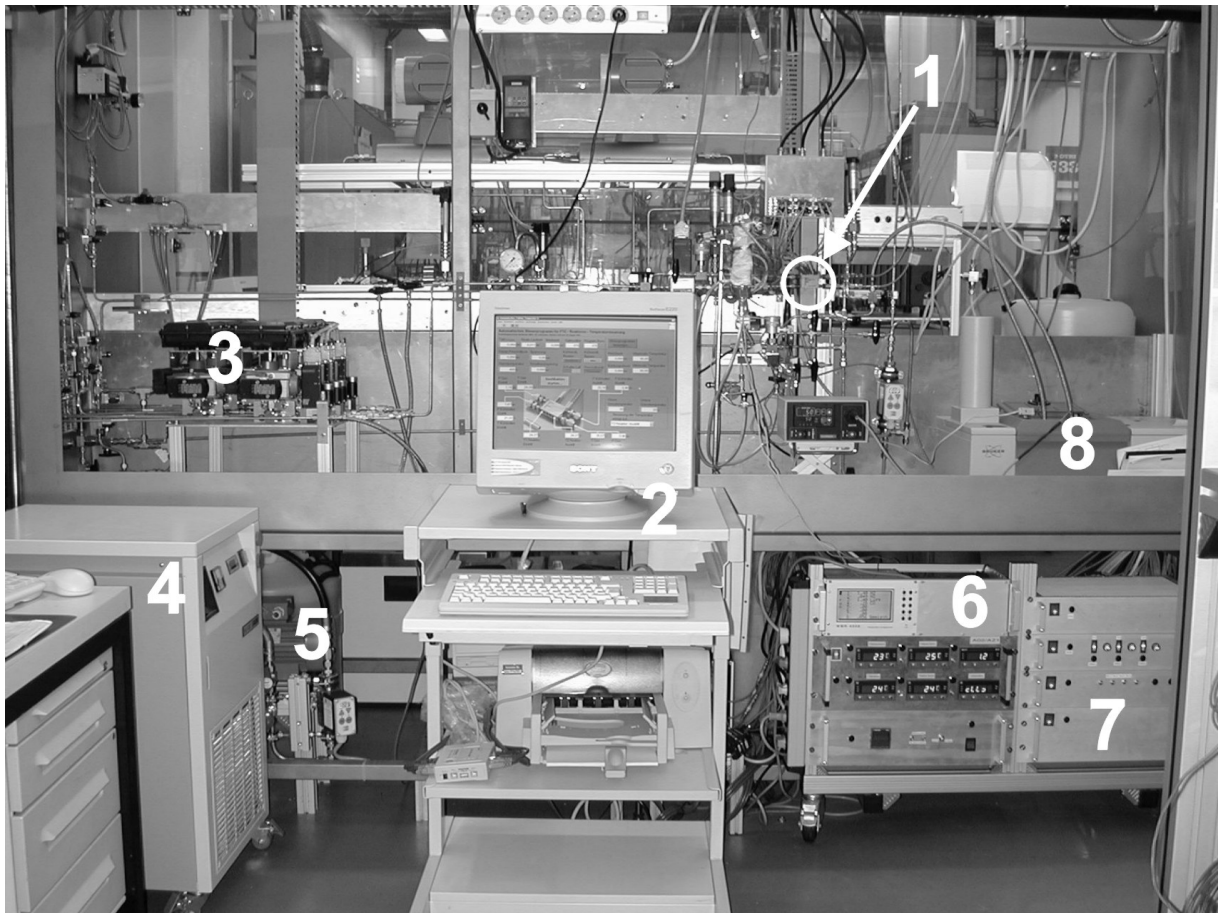


Abb. 5-2 Übersichtphoto über die Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* chemischer Reaktionen. 1: Mikrostrukturreaktor, 2: Steuer-PC, 3: Sicherheitsventile und MassFlowController, 4: Mobile Rückkühleinheit, 5: Pumpe für den Kühlmediumkreis, 6: Master-MFC, 7: Meß- und Regelelektronik, 8: FTIR-Spektrometer.

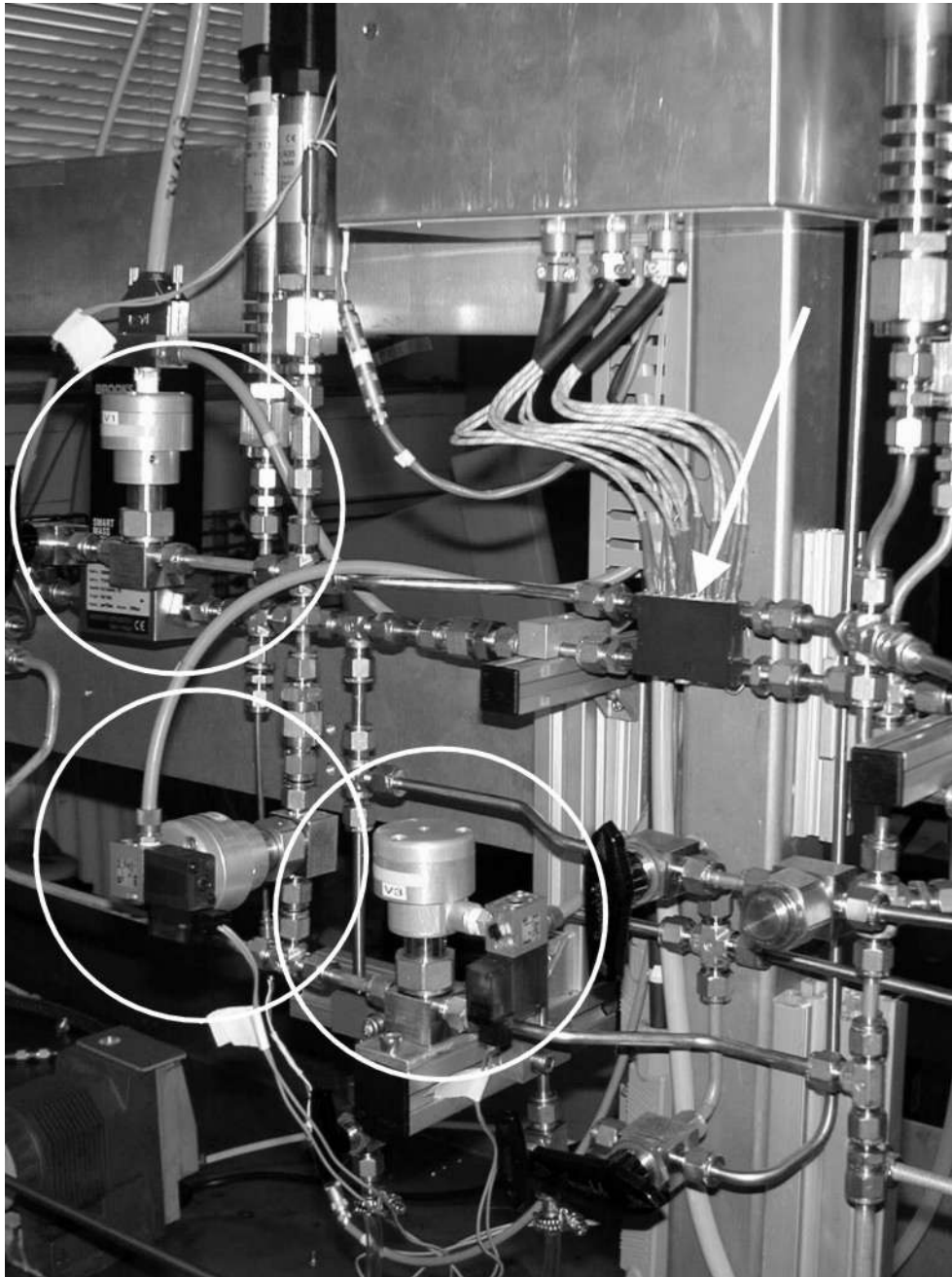


Abb. 5-3 Details der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* chemischer Reaktionen. Die Kreise umschließen die drei pressluftgetriebenen Magnetventile MV1, MV2 und MV3. Der weiße Pfeil deutet auf den integrierten *FTC-Reaktor Typ 1*.

In der Zuleitung zur Kühlpassage ist nach dem Ventil MV2 ein Rückschlagventil eingesetzt, welches eine eindeutige Durchflußrichtung zum Mikrostrukturapparat festlegt.

Zusätzlich wird eine Pressluftleitung mittels Schottverschraubungen in die Anlage integriert. Die Pressluft wird mittels Stahlgewebeschläuchen und festen Edelstahlrohren (Durchmesser: 6 mm) über ein Rückschlagventil sowohl zu einer Verteilerstation zur Versorgung der pressluftgetriebenen Magnetventile als auch in Richtung des Mikrostruktureaktors geleitet. Über ein pressluftgetriebenes, elektronisch gesteuertes Magnetventil MV1 vom Typ „normally open“ kann die Pressluft mit einem Druck von bis zu 1,0 MPa in die Kühlmediumzuleitung eingekoppelt werden.

Etwa 50 mm vor dem Kühlmedium Eintritt in die Kühlpassage des Mikrostrukturapparates werden Druck und Temperatur des Kühlmediums mit einem Druckaufnehmer P4 und einem Thermoelement T1 gemessen. Weitere Thermoelemente T3 bis T6 messen die Temperatur im Inneren des Mikrostrukturapparates. Wiederum ca. 50 mm hinter dem Austritt des Kühlmediums aus dem Mikrostrukturapparat werden Druck und Temperatur mittels eines Druckaufnehmers P7 und eines Thermoelements T8 gemessen, wobei die Meßspitze des Thermoelements sich nur etwa 1 mm hinter dem Kühlmediumauslaß des Mikrostrukturapparates innerhalb des Adapters des Mikrostrukturapparates befindet.

Ein weiteres Rückschlagventil sorgt für eine eindeutige Flußrichtung des Kühlmediums. Nach diesem Rückschlagventil werden Kühlpassage und Bypassleitung vereinigt. Ein Durchflußmesser MFM3 mißt den Kühlmediestrom. Der Durchflußmesser ist mit einer elektronischen Anzeige verbunden, die ebenfalls zu den Sicherheitseinrichtungen der Versuchsanlage gehört. Die Funktion dieser Einrichtungen wird in Abschnitt 5.7 ausführlich erläutert.

Der Kühlmediumrücklauf wird in eine mobile Rückkühleinheit Lauda WK1400 geleitet, mit dem Inhalt eines dort vorhandenen Kühlmittelreservoirs vermischt und auf eine Temperatur von etwa 10 °C gekühlt. Aus der Rückkühleinheit wird das Kühlmedium über einen Durchflußmesser MFM2 und ein Regelventil zurück in die Vorlage gepumpt.

5.2 Aufbau der Reaktionsgasversorgung

Aus einer zentralen Gasversorgungsanlage für das Laborgebäude werden die drei für das Reaktionsgasgemisch benötigten Gase N₂, CO und O₂ mit Hilfe von Druckmindererstationen entnommen und mittels Edelstahlschläuchen und Schottverschraubungen in die Flowbox geführt. Ein Anschluß für H₂ wurde ebenfalls integriert, um auch Gasmischungen mit Wasserstoffanteil realisieren zu können. Für zukünftige Untersuchungen zur Selektivitätssteigerung ist dies vermutlich notwendig.

Innerhalb der Flowbox sind alle gasführenden Leitungen mit Edelstahlrohren (Durchmesser: 6 mm) ausgeführt. Alle in der Flowbox integrierten Gasleitungen sind mittels Kugelhähnen einzeln verschließbar und können über parallel verlaufende, kurze Leitungsenden, die mit Kugelhähnen verschlossen sind, entlüftet werden.

Die drei Zuleitungen für die Gase H_2 , O_2 und CO sind sowohl mit der Zuführungsleitung zum Mikrostrukturapparat als auch mit der Abgasleitung verbunden. Als Sicherheits-einrichtung dienen sechs pressluftgetriebene Schaltventile, von denen je zwei in Gruppen geschaltet sind. Die Ventile in Richtung des Mikrostrukturreaktors sind vom Typ „normally closed“, während die Ventile in Richtung Abgasleitung vom Typ „normally open“ sind. Diese Gruppierung sorgt bei einem Notfall dafür, daß keine Gemische aus reaktiven Gasen in Richtung des Mikrostrukturreaktors strömen. Im Normalbetrieb werden mit Hilfe einer Versorgungsspannung die Ventile in Richtung Mikrostrukturapparat geöffnet, die Ventile in Richtung Abgasleitung geschlossen.

Der Volumenstrom für alle vier Gase wird mittels MassFlowControllern (MFC1 bis MFC4) eingestellt, die über ein zentrales Steuergerät Master-MFC geregelt werden. In Richtung des Mikrostrukturapparates ist in jede Gasleitung zur Sicherheit ein Rückschlagventil integriert. Parallel zu den MassFlowControllern ist eine weitere Dosiermöglichkeit für N_2 durch ein Nadeldosierventil vorgesehen, so daß insgesamt fünf Gasleitungen parallel verlaufen.

Die fünf Gasleitungen werden mittels Kreuz- und T-Verbindungsstücken zu einer einzigen Gasleitung zusammengefaßt. Die Verbindungsstücke sowie mehrere Winkel und ein Metallsinterfilter (Porengröße: $5\ \mu m$) in dieser Gasleitung dienen als Mischstrecken für das Reaktionsgasgemisch. Ein echter Vermischer ist nicht notwendig.

Ein Druckaufnehmer P1 dient zur Kontrolle des Gasdrucks in der Sammelleitung und ist mittels einer elektronischen Anzeige in das Sicherheitskonzept der Versuchsanlage integriert. Mit einem zusätzlichen Kugelhahn kann die Gaszuleitung zum Mikrostrukturreaktor insgesamt geschlossen werden.

Ein FlowMeter MFM1 ist an das zentrale Steuergerät Master-MFC angeschlossen und dient zur Überwachung des Gesamtgasvolumenstromes durch den Mikrostrukturapparat. Ein Abzweig für eine Bypassleitung, die den Mikrostrukturapparat umgeht, folgt. Ein weiteres Rückschlagventil in der Zuleitung zum Mikrostrukturapparat schützt den FlowMeter MFM1 vor möglichen Druckstößen.

In den Anschlußstutzen des Mikrostrukturapparates sind ein Thermoelement T2 und ein Druckaufnehmer P5 integriert. Die Temperatur des Gasstromes wird etwa 20 mm vor Eintritt in den Mikrostrukturapparat gemessen. Die Temperatur des Gasstroms am Austritt aus der Reaktionspassage wird mit einem speziellen Thermoelement T6 etwa 1 mm nach dem Austritt des Reaktionsgasstromes aus dem Mikrostrukturapparat gemessen. Somit ist die mit „Austrittstemperatur“ bezeichnete Temperatur eigentlich nicht die Temperatur, die ein Gasstrom an einem infinitesimal dicht am Austritt aus einem Mikrokanal liegenden Messpunkt haben würde, sondern eine Temperatur an einem „entfernten“ Meßpunkt (vgl. Abschnitt 6.2.1) und damit entsprechend fehlerbehaftet. Als Vereinfachung sei jedoch weiterhin der Name „Austrittstemperatur“ verwendet. Allgemein ist zu beachten, daß die Temperaturen von Gasströmen wegen der niedrigen spez. Wärmekapazitäten von Gasen nur schwer exakt zu messen sind. Eigentlich sollten stets mehrere Thermoelemente an verschiedenen Meßpunkten in einen Gasstrom integriert werden und anschließend eine Mittelwertbildung erfolgen, was den Meßaufwand erheblich steigert. An dieser Stelle soll jedoch nicht weiter hierauf eingegangen werden.

Zusätzlich wird der Druck des Reaktionsgasstroms mit einem Druckaufnehmer P6 gemessen. Ein nachgeschalteter Metallsinterfilter mit einer Porengröße von $5\ \mu m$ ermöglicht es, aus der Katalysatorträgerschicht herausgelöste Partikel aufzufangen und zu analysieren.

Nach dem Filter wird die Bypassleitung wieder mit der Hauptreaktionsgasleitung vereinigt. Ein Abzweig der Bypassleitung wird über ein Katalysator-testsystem aus Glas (vgl. Tönnies (2002)) geführt und anschließend wieder in die Hauptreaktionsgasleitung geführt. Diese Leitung wird in drei Zweige gespalten, von denen einer zur Abgasleitung, ein weiterer zu einem angeschlossenen FTIR-Spektrometer Bruker VECTOR 22 und der dritte zu einem Gaschromatographen Agilent Series HP 6890 führt. Die Ausgänge des FTIR-Spektrometers und des Gaschromatographen sind jeweils wiederum an die Abgasleitung angeschlossen.

5.3 Spannungsversorgung

Alle Meßaufnehmer, die eine externe Spannungsversorgung benötigen, sind an Konstantspannungsquellen mit einer Ausgangsspannung von 24 V DC angeschlossen.

Die elektrische Beheizung des Mikrostrukturapparates erfolgt über ein regelbares Dreifach-Transformatornetzteil der Firma ELNA.

5.4 Meß- und Regeltechnik

Die gesamte Ansteuerung und Auswertung der Meß- und Regelelektronik für die beschriebene Versuchsanlage wurde mit Hilfe der graphischen Programmier-technik in der Entwicklungsumgebung LabVIEW Version 6i der Firma National Instruments realisiert. Es wurde versucht, innerhalb eines relativ kompakten Programms eine möglichst gute Verbindung von einfacher Bedienbarkeit und größtmöglicher Arbeitsgeschwindigkeit zu erzielen.

Im Zuge dessen werden nur einheitliche Typen von Sensoren und Aktuatoren verwendet sowie Meßhardware und A/D-Wandler, die eine hohe Samplerate und damit sowohl hohe Meßgenauigkeit als auch hohe Meßgeschwindigkeit zulassen.

Grundlage der Meßdatenerfassung ist ein handelsüblicher PC (PC1, Intel Pentium 3, 933 MHz Taktfrequenz, 256 MB RAM, 40 GB Festplatte) mit einer integrierten Multi-I/O-Karte der Firma National Instruments vom Typ AT-MIO-16E-10 mit ISA-Bus. An diese Karte angeschlossen wird ein Meßdatenerfassungssystem der Firma National Instruments vom Typ SCXI-1000 mit vier Einschubmöglichkeiten für Meßverstärker oder Regelverstärker. Es werden zwei Meßverstärkermodule vom Typ National Instruments SCXI 1122, jeweils mit Terminal Block SCXI 1322, sowie zwei Regelmodule vom Typ SCXI 1124, jeweils mit Terminal Block SCXI 1325, eingesetzt. Mit dieser Kombination lassen sich gleichzeitig bis zu 32 analoge Gleichspannungs- bzw. Gleichstrom-Signalquellen mit einem Signalbereich von -10 V bis $+10\text{ V}$ oder -20 mA bis $+20\text{ mA}$ sowie zwölf analoge Regelsignale im Bereich $0 - 10\text{ V DC}$ darstellen.

Meßmodul 1 wird verwendet, um die Spannungen der Thermo-elemente mit einem Eingangsbereich von $-0,10\text{ V}$ bis $+0,10\text{ V}$ zu erfassen. An Meßmodul 2 sind die Druckaufnehmer mit einem Eingangsbereich von $0,0\text{ V}$ bis $+10,0\text{ V}$ angeschlossen.

Regelmodul 1 wird verwendet, um die Regelspannung an die Magnetventile auszugeben. Es wird dabei ausschließlich zwischen den Werten $0,0\text{ V DC}$ und $+10,0\text{ V DC}$ geschaltet. Regelmodul 2 wird zur Ansteuerung des Netzteils der elektrischen Beheizung des Mikrostrukturapparates verwendet. Die Ausgangsspannung kann hier zwischen $0,0\text{ V DC}$ und $+10,0\text{ V DC}$ linear variiert werden.

5.4.1 Sensoren und Aktuatoren

Wie bereits beschrieben, wird darauf geachtet, innerhalb einer der Klassen von Sensoren nur Geräte gleichen Typs zu verwenden, um so die Notwendigkeit von Kalibrationen und Anpassungsrechnungen so gering wie möglich zu halten.

5.4.1.1 Temperatursensoren

Alle in der Testanlage verwendeten Temperatursensoren sind Thermoelemente vom Typ K (Materialkombination NiCr/Ni) mit Edelmantel. Sie sind für einen Temperaturbereich von -200 °C bis 800 °C geeignet. Die verwendeten Thermoelemente unterscheiden sich nur im Außendurchmesser des Mantels und daher in ihrer Ansprechzeit t_{90} (Zeit bis zum Erreichen von 90 % des stabilen Endwertes).

Während in den Zuflüssen der einzelnen Passagen des *FTC-Reaktors* (T1 und T2) Thermoelemente mit einem Mantelaußendurchmesser von 3,0 mm und einer Ansprechzeit t_{90} von 0,3 Sekunden verwendet werden, weisen die Thermoelemente T3 bis T6, die zur Messung der Temperatur innerhalb des Mikrostrukturapparates verwendet werden, einen Mantelaußendurchmesser von 0,5 mm und ein t_{90} von 0,1 s auf. Die Thermoelemente T7 und T8, die in die Abflüsse der einzelnen Passagen integriert sind, haben einen Mantelaußendurchmesser von 0,25 mm bei einem t_{90} von 0,04 s.

5.4.1.2 Druckaufnehmer

In die Versuchsanlage sind ausschließlich Präzisionsdruckaufnehmer mit bündiger Edelmantelmembran der Firma Haenni vom Typ ED 513/374.411/A35 mit einem Meßbereich von 0,0 MPa bis 2,0 MPa Absolutdruck integriert. Alle Druckaufnehmer liefern ein Ausgangssignal von 0,0 V bis 10,0 V. Die Druckaufnehmer in den Zuflüssen zum Mikrostrukturapparat sind auf eine Meßtemperatur von 25 °C kalibriert, während die Druckaufnehmer in den Abflußbereichen des Mikrostrukturapparates auf eine Meßtemperatur von 175 °C kalibriert wurden. Eine Temperaturkompensation wurde ab Werk in eine mitgelieferte Kalibrierkurve eingerechnet und ist somit für die einzelnen Druckaufnehmer nicht mehr notwendig.

5.4.1.3 Durchflußregler und Durchflußmesser

Die Durchflußregler MFC1 bis MFC4 für die Gasversorgung sind alle vom Typ Brooks 5850S, weisen jedoch unterschiedliche Durchflußbereiche auf. Während die MFC3 und MFC4 für einen maximalen Volumenstrom von $20,0\text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$ (STP) kalibriert sind, ist der MFC2 für einen Volumenstrom von $100,0\text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$ (STP) Sauerstoff und der MFC1 auf einen maximalen Stickstoffvolumenstrom von $1,0\text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (STP) kalibriert.

Der zur Messung des Gesamtgasvolumenstroms verwendete FlowMeter MFM1 ist vom Typ Brooks 5860S und auf einen Gesamtvolumenstrom von $2,0\text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (STP) Stickstoff kalibriert. Da die Hauptkomponente des Reaktionsgasvolumenstroms Stickstoff ist und der MFM1 nur zur Überwachung des Volumenstroms dient, ist der durch die Kalibration auf Stickstoff als strömendes Medium auftretende Fehler vernachlässigbar.

Geregelt werden alle in die Gasversorgung der Versuchsanlage integrierten Geräte mit Hilfe eines zentralen Steuergerätes (Master-MFC) vom Typ Brooks WMR4008. Das Steuergerät kann über eine digitale RS232-Verbindung mit dem Steuer-PC der Versuchsanlage gekoppelt werden. Derzeit besteht diese Verbindung nicht.

Für die Messung des Volumenstroms des Kühlmediums werden Flügelrad-Durchflußmesser der Firma Kobold vom Typ DF-K eingesetzt.

5.4.1.4 Spannungsversorgung der Heizung des Mikrostrukturapparates

Über ein Regelsignal (0,0 V DC bis 10,0 V DC) wird die Position eines Stellmotors geregelt, der die Abgriffposition an drei übereinander gelagerten Eisenkerntensformatoren steuert. Die Eisenkerntensformatoren sind jeweils an eine Phase eines Drehstromanschlusses gekoppelt und liefern somit einstellbare 0 V DC bis 230 V DC bei einem Maximalstrom von 10,0 A.

5.4.1.5 Toleranzen, Abweichungen und Kalibrierung der Sensoren und Aktuatoren

Alle verwendeten Thermolemente weisen Toleranzen von höchstens 0,25 % des Endwertes auf, was einer absoluten Abweichung von maximal 2,0 K entspricht. Die Thermolemente wurden mit Referenztemperaturen beaufschlagt (0,0 °C: Eiswasser, 99,97 °C: Siedendes Wasser, alle Daten Normdaten nach Wärmetatlas 1994) und die dabei resultierende Thermo-spannung mittels eines Präzisionsmultimeters gemessen. Eine Abweichung von den in der Literatur genannten Referenzspannungen (0,0 mV für 0,0 °C, 4,095 mV für 100,0 °C) für Typ K – Thermolemente konnte im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht festgestellt werden. Auf eine Nachkalibrierung wird daher verzichtet.

Die verwendeten Druckaufnehmer liefern alle ein Ausgangssignal im Bereich von 0,0 V bis 10,0 V und weisen eine maximale Abweichung von 0,5 % des angegebenen Endwertes auf. Eine in die Druckaufnehmer integrierte Elektronik führt eine Temperaturkompensation durch. Referenzmessungen mit mehreren kalibrierten Anzeigegeräten und den verwendeten Druckaufnehmern bei verschiedenen Drücken zwischen 0,1 MPa und 2,0 MPa bestätigen die in den Datenblättern angegebenen Kalibrierfaktoren. Eine meßbare Abweichung konnte nicht festgestellt werden. Daher werden die angegebenen Kalibrierfaktoren zur Linearisierung und Umrechnung der Meßspannung in Absolutwerte verwendet.

Die eingesetzten MassFlowController und MassFlowMeter wurden mit Hilfe einer Gasblasensäule kalibriert, entsprechende Kalibrierfaktoren werden zur Einstellung des gewünschten Gasvolumenstroms verwendet. Eine Kalibrierung und Steuerung über einen PC erfolgt derzeit nicht.

Für die Flügelrad-Durchflußmesser des Kühlmittelkreislaufes wird eine Toleranz von 2,0 % Abweichung vom Endwert angegeben. Die angezeigten Meßwerte wurden mittels Auslitern überprüft. Die angegebene Toleranz konnte bestätigt werden.

Das verwendete Regelnetzteil weist laut Hersteller pro Eisenkerntrafo eine Restwelligkeit von 2,0 % auf. Die in das Regelnetzteil integrierten Anzeigegeräte wurden mit einem Präzisionsmultimeter überprüft, eine Abweichung von den angezeigten Werten konnte im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht festgestellt werden. Der Frequenzgehalt der Ausgangsspannung wurde mit einem Oszilloskop ermittelt, eine Restwelligkeit von 1,4 % wurde gemessen. Die von den in das Netzteil integrierten Anzeigegeräten angezeigten Werte werden daher zur Leistungsberechnung der eingekoppelten elektrischen Leistung verwendet.

Es werden ausschließlich Spannungssignale zur Messung der gewünschten Größen verwendet, auch die Regelung der Komponenten der Versuchsanlage erfolgt, wenn nicht gesondert mittels digitaler RS232- oder RS485-Kommunikation, mit Hilfe von Spannungssignalen.

Besonderes Augenmerk wird auf die Analog-Digital-Wandlung der Meßsignale gelegt. Die verwendete Multi-I/O-Karte weist bei einer Auflösung von 16 Bit einen relativen Fehler bei der Analog-Digital-Wandlung von 0,03 % des letzten relevanten Datenbitwertes auf. Dazu kommt ein Offset von maximal 13,0 μV sowie ein Rauschen von (gemittelten) 1,8 μV . Die Temperaturdrift liegt bei durchschnittlich 0,0006 % pro Grad Celsius. Es ergibt sich somit eine relative mittlere Abweichung der Digital-Analog-Wandlung der Karte von 2,4 μV für Thermoelemente und von 48,2 μV für Signale im Bereich 0,0 V bis 10,0 V. Da die verwendeten Thermoelemente allesamt Signale im Millivoltbereich liefern, erzielt man eine relative Genauigkeit von minimal 0,25 %.

Je nach eingestellter Abtastrate und verwendetem Modus sind die Toleranzen der einzelnen Meß- und Regelmodule zu beachten. Bei dem verwendeten Bandfilter mit 4 kHz Bandbreite lassen sich Signale im genannten Bereich mit einer Genauigkeit von 0,10 % des Anzeigewertes messen. Die Nichtlinearität der verwendeten Meßverstärker liegt bei 0,01 %. Es sind hierbei maximal 100 Meßwerte pro Sekunde und Kanal messbar.

Die Toleranz für die Regelsignale liegt bei absolut 0,05 % des Endwertes. Die Digital-Analog-Wandlung erfolgt zuvor mit einer maximalen Abweichung von 0,5 % des letzten relevanten Datenbitwertes bei einer Auflösung von 16 Bit. Das Rauschen liegt für Ausgangsspannungen im Bereich von 0,0 V bis 10,0 V bei 1,0 mV, die Temperaturdrift bei 6,0 ppm pro Grad Celsius im bipolaren Betrieb.

Alles in allem können die angegebenen Toleranzen und Abweichungen der Datenerfassungs- und Regelsysteme gegenüber den Toleranzen der verwendeten Thermoelemente und Drucksensoren sowie im Hinblick auf die durch das Zeitverhalten der *FTC-Reaktoren* und der Steuersoftware entstehenden Abweichungen vernachlässigt werden. Es wird daher nicht weiter auf diese systematischen Fehler eingegangen.

5.4.2 Infrarot-Thermographie

Zur Visualisierung des thermischen Verhaltens der verschiedenen Mikrostrukturapparate wird ein Gerät zur Infrarot-Thermographie vom Typ Goratec TVS-2000MKII verwendet. Mit diesem Gerät lassen sich sowohl stationäre Temperaturverteilungen als auch dynamische Veränderungen der Temperaturverteilung an der Oberfläche von Mikrostrukturapparaten bildhaft darstellen.

Da die Mikrostrukturapparate aus Edelstahl bestehen und daher im Normalfall eine reflektierende Oberfläche aufweisen, deren Emissionsfaktor im Infrarotbereich undefiniert ist, werden die zu messenden Oberflächen mit einer schwarzen Farbe (Pelikan Plaka-Farbe Nr.70) versehen. Mit dieser Farbe ist ein definierter Emissionsfaktor von 0,98 erzielbar. Die Farbe ist kurzzeitig bis etwa 400 °C stabil, für längere Versuche sollte eine Temperatur von etwa 200 °C nicht überschritten werden. Durch Kalibrationsmessungen mit einem Oberflächenthermometer konnte der Emissionsfaktor der zu messenden Oberfläche sowie die Sensitivität und die Temperaturauflösung des Thermographiegerätes eingestellt werden, so daß eine maximale Abweichung der angezeigten Temperatur von der Temperatur an der Oberfläche eines Mikrostrukturapparates von etwa 10 K erzielt werden konnte.

Brandner et al. (2001), Wenka et al. (2002) und Pfeifer et al. (2002) konnten zeigen, daß die tatsächliche, innerhalb eines Mikrostrukturapparates gemessene Temperatur mit den an der Oberfläche gemessenen Temperaturen mit einer Abweichung von wenigen Grad übereinstimmt. Die aufgezeichneten Oberflächentemperaturen liefern somit eine zuverlässige, wenn auch nicht sonderlich präzise, Wiedergabe der Temperaturverteilung innerhalb eines Mikrostrukturapparates.

Wichtiger ist jedoch, daß sich auf diese Weise auch „hot spots“ oder „cold spots“ mit jeweils erheblicher Abweichung von der mittleren Temperatur der Mikrostrukturapparate feststellen lassen, die eventuell eine Veränderung des Designs der Mikrostrukturapparate notwendig machen. In Abbildung 5-4 ist ein solches Thermographiebild eines *FTC-Reaktors Typ 1* während eines Abkühlteilzyklus dargestellt.

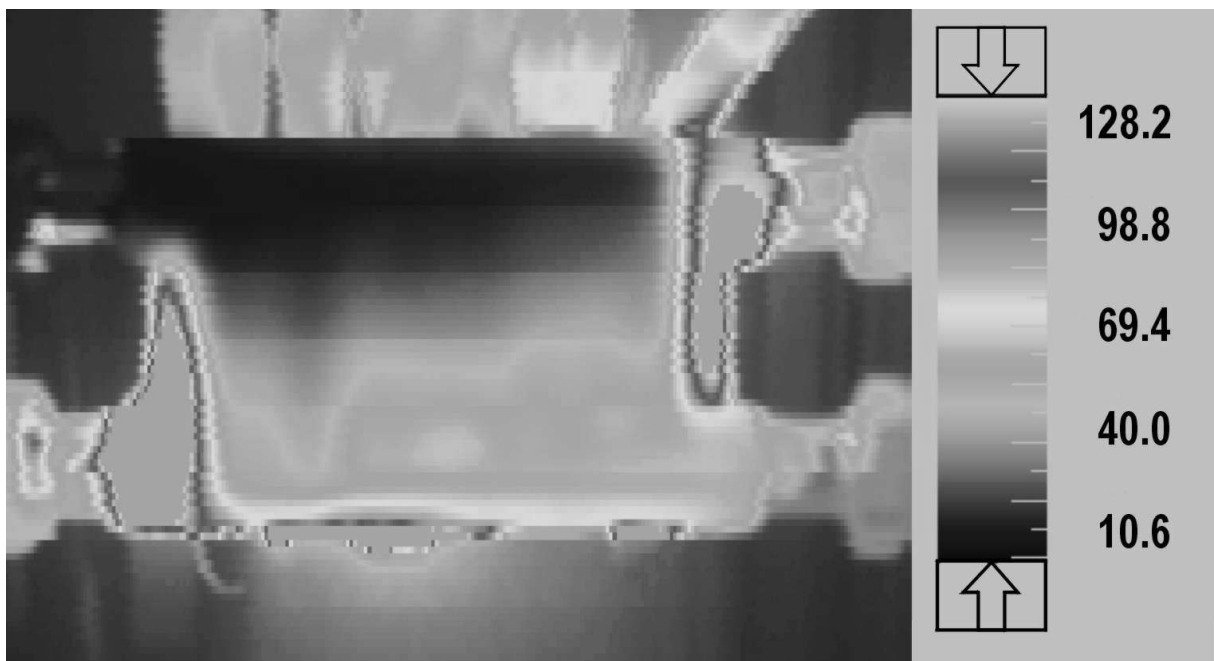


Abb. 5-4 Infrarot-Thermographiephoto eines *FTC-Reaktors Typ 1* während eines Abkühlteilzyklus. Das Kühlmedium tritt von oben links in den Mikrostrukturapparat ein und verläßt ihn unten rechts. Die beiden Anschlüsse unten links und oben rechts sind der Einlaß- und der Auslaßstutzen der Reaktionsgaspassage. Deutlich ist zu erkennen, daß diese Bereiche nicht durch strömendes Wärmeübertragerfluid gekühlt werden und daher eine höhere Temperatur aufweisen als die gekühlten Bereiche des Mikrostrukturapparates.

Von entscheidender Bedeutung bei der Verwendung eines Thermographiesystems ist es, daß auch schnelle Änderungen der Temperatur visualisiert werden können. Das Thermographiesystem wird dazu mit einem digitalen Videorecorder Sony GVD-900E verbunden und die schnellen Temperaturwechsel der *FTC-Mikrostrukturapparate* in Echtzeit und digitaler Form aufgezeichnet. Die so erhaltenen Videosequenzen können zur Auswertung der realen Zykluszeiten und zur Visualisierung des Temperaturverhaltens genutzt werden. Es ist somit möglich, das thermische Verhalten einzelner Mikrostrukturapparate aufzuzeichnen und miteinander zu vergleichen.

5.4.3 Analysegeräte

5.4.3.1 FTIR-Spektrometrie

In die Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten ist zur schnellen Analyse der Zusammensetzung des Reaktionsgasstromes ein FTIR-Spektrometer vom Typ VECTOR 22 der Firma Bruker Analytik GmbH integriert. Das Gerät ist mit einer Laser-Infrarotlichtquelle ausgestattet und arbeitet wahlweise mit einem LADTGS-Detektor (LADTGS: L-Alanin dotiertes deuteriertes Triglyzinsulfat) oder einem flüssigstickstoffgekühlten MCT-Detektor (MCT: Mercury Cadmium Tellurid).

Das mit Hilfe des Infrarotlasers erzeugte Interferogramm wird in einem Preprozessor mittels eines Analog-Digital-Wandler mit einer Auflösung von 16 Bit in ein digitales Signal umgewandelt, welches anschließend weiterverarbeitet werden kann. Ein Postprozessor erzeugt mittels Fourier-Transformation und inverser Fourier-Transformation aus dem Interferogramm das Spektrum der jeweiligen Messung.

Sowohl mit dem LADTGS-Detektor als auch mit dem MCT-Detektor sind Analysen des Reaktionsverlaufs während des *Fast Temperature Cycling* chemischer Reaktionen möglich, da innerhalb einer Taktperiode je nach Periodendauer mehrere komplette IR-Spektren des Reaktionsgasgemisches aufgezeichnet werden können.

Selbstverständlich ist die Analytik mittels FTIR-Spektrometrie auf Gase und Materialien beschränkt, die im entsprechenden Wellenlängenbereich optisch aktive Zentren aufweisen. Bei der verwendeten Testreaktion sind jedoch sowohl CO als auch CO₂ gut mittels FTIR-Spektrometrie zu erkennen.

An dieser Stelle soll nicht weiter auf die Prinzipien und Verfahren der IR-Spektrometrie eingegangen werden. Guenzler et al. (1996) sowie Gottwald et al. (1997) liefern gute Zusammenfassungen und ausführliche Erläuterungen zur IR-Spektroskopie und deren Anwendungen. Eine ausführliche Sammlung von FTIR-Spektren der verschiedensten Materialien findet sich z.B. bei Nyquist (1997).

Zur Messung der Gaszusammensetzung wird eine beheizte Edelstahl-Meßküvette TGC-S10 der Firma Harrick Scientific Corp. mit integrierten Fenstern aus KBr eingesetzt. Die KBr-Fenster sind mit Kalrez-Dichtungen eingedichtet, so daß eine maximale Dauertemperatur von 260 °C erzielt werden kann. Die optische Weglänge beträgt 10 cm bei einem Gasvolumen von 17 ml. Bei einem Reaktionsgasvolumenstrom von 200,0 ml · min⁻¹ (STP) wird das Gasvolumen der Küvette somit mehr als elfmal pro Minute ausgetauscht.

Grundlegende Messungen wurden sowohl mit kalter Küvette als auch bei verschiedenen Küvettemperaturen mit Prüfgasen durchgeführt. Dabei zeigte sich, daß eine Küvettemperatur von 50 °C zur vollständigen Analyse ausreichend ist. Die gewählte Temperatur führt nicht zu unerwünschten katalytischen Reaktionen an den Edelstahlwänden der Verbindungsrohre oder der Küvette, sorgt jedoch dafür, daß die Bedeckung der Wände der Rohre und der Meßküvette mit CO bzw. CO₂ vernachlässigt werden kann. In Abbildung 5-5 sind FTIR-Spektren von zwei unterschiedlichen Prüfgasen dargestellt. Die Messungen wurden mit einem Prüfgas, das neben N₂ 10,0 Vol-% CO enthält, sowie einem anderen Prüfgas, welches neben N₂ 10,0 Vol-% CO₂ enthält, durchgeführt. Es wurde jeweils ein Gasvolumenstrom von 200,0 ml · min⁻¹ (STP) bei einer Küvettemperatur von 50 °C eingestellt.

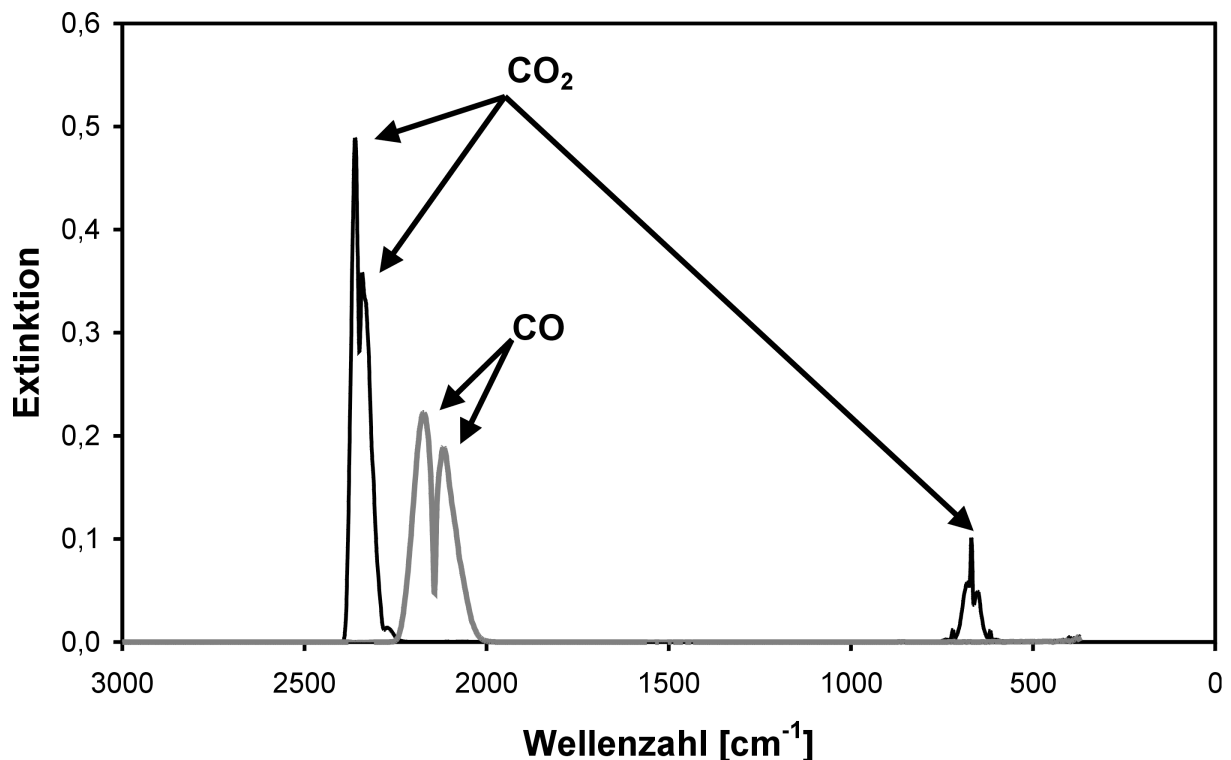


Abb. 5-5 FTIR-Spektren zweier Prüfgase. Prüfgas 1 bestand aus 10 Vol-% CO in N₂, Prüfgas 2 aus 10 Vol.-% CO₂ in N₂. Für beide Gase wurde ein Volumenstrom von 200 ml · min⁻¹ (STP) eingestellt. Die Temperatur der Meßküvette wurde bei 50 °C konstant gehalten. Deutlich ist zu erkennen, daß die Signale beider Gase sehr gut voneinander zu trennen sind.

5.4.3.2 Gaschromatographie

Zusätzlich zur Analytik mit Hilfe der FTIR-Spektrometrie ist in die Anlage zum *thermisch instationären Betrieb* chemischer Reaktionen die Möglichkeit der Gasanalytik mit Hilfe eines Gaschromatographen Agilent GC Series HP 6890 integriert. Die Analytik mit dem genannten Gaschromatographen eignet sich jedoch nicht zur fortlaufenden Überwachung der Gaszusammensetzung, da mit diesem Gerät ein kompletter Meßzyklus etwas mehr als 20 Minuten dauert.

Der Gaschromatograph ist für zwei unterschiedliche Trennmethode ausgerüstet und mit zwei Detektoren bestückt. Zur Trennung von polaren Substanzen wie z.B. CO₂, H₂O und Methanol wird eine Pora-Plot-Trennsäule verwendet, die auf einer Schichtkapillarsäule beruht. Zur Trennung von unpolaren Stoffen und Permanentgasen wie CO oder H₂ wird ein Molsieb verwendet. Dieses Molsieb besteht ebenfalls aus einer Schichtkapillarsäule mit einer Porengröße von nur 0,5 nm. Ein Wärmeleitfähigkeitsdetektor (WLD) und ein Flammenionisationsdetektor (FID) sind in das Gerät integriert.

Zusätzlich ist eine Methanisierungseinheit im Gerät eingesetzt. Hierbei handelt es sich um eine Nickelkatalysatorschüttung, die unter Zugabe von H₂ CO und CO₂ in Methan umwandelt, welches anschließend mit Hilfe des FID analysiert werden kann. Die Prinzipreaktionen hierzu lauten

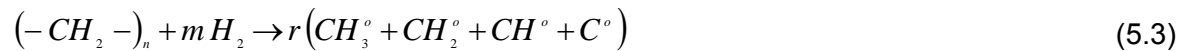


Der FID funktioniert nach dem Prinzip der Pyrolyse und Erzeugung von (angeregten) Radikalen. Er besteht aus einem Brenner, der als Brenngas Wasserstoff verwendet. Gemeinsam mit dem Wasserstoff wird ein Trägergas und die damit transportierten Substanzen zur Analyse verbrannt. Die elektrische Leitfähigkeit der verbrannten Gasmischung wird mittels zweier Elektroden bestimmt. Die Leitfähigkeit ist abhängig von den im Trägergas befindlichen Substanzen und proportional zu deren absoluter Masse.

Die Empfindlichkeit des FID bezüglich C-H-Verbindungen ist sehr hoch. Eine Detektion von CO und CO₂ ist jedoch schwierig, da diese Gase nicht genügend Elektronen freisetzen, um ein eindeutiges Signal zu erhalten. Daher wird für diese Substanzen in der Regel die Methanisierungseinheit verwendet.

Der Reaktionsablauf kann prinzipiell wie folgt dargestellt werden:

1. Pyrolyse (Beispiel)



2. Bildung von angeregten Radikalen aus Sauerstoff bzw. sauerstoffhaltigen Substanzen (Beispiel)



3. Ionisierung (Beispiel)



Der WLD arbeitet nach dem Prinzip der Wheatstone'schen Brückenschaltung. In den die zu messenden Substanzen enthaltenden Gasstrom wird ein Heizdraht eingebracht. Ein weiterer Heizdraht befindet sich in einem Referenzgasstrom. Beide Heizdrähte weisen einen genau bekannten Widerstand auf und sind zusammen mit zwei Präzisionswiderständen zu einer Brückenschaltung verkoppelt. Der sich ausbildende Gesamtwiderstand ist den jeweils im Meßgasstrom enthaltenen Substanzen proportional.

An dieser Stelle soll nicht weiter auf die Prinzipien und Meßmethoden der Gaschromatographie eingegangen werden. Weitergehende Informationen finden sich z.B. bei Gottwald (1995) oder Hübschmann (2001).

5.4.3.3 Toleranzen und Abweichungen der Analysegeräte

Im Folgenden sollen nur einige kurze Anmerkungen zur Präzision und den Toleranzen der Geräte gemacht werden.

Das FTIR-Spektrometer VECTOR 22 bietet innerhalb des Spektralbereichs von 7500 cm^{-1} bis 370 cm^{-1} eine maximale Auflösung von 1 cm^{-1} bei einer Wellenzahlgenauigkeit von $0,5 \text{ cm}^{-1}$. Bei einer Meßzeit von 5 Sekunden ist das Signal-Rauschverhältnis laut Hersteller mit einem Wert besser als 4000:1 angegeben.

Mit dem VECTOR 22 können, bei einer Auflösung von 8 cm^{-1} , maximal 2 Spektren pro Sekunde aufgezeichnet werden. Mit höherer Auflösung reduziert sich die Anzahl der möglichen Spektren je Sekunde entsprechend. Jedoch ist bei den voraussichtlichen Periodendauern des *Fast Temperature Cycling* die Aufnahme von zwei Spektren pro Sekunde ausreichend zur Detektion von temperaturabhängigen Veränderungen in der Zusammensetzung des Reaktionsgasgemischs.

Da ein kompletter Meßzyklus mit dem GC etwa 20 Minuten dauert, eignet sich dieses Gerät nicht zur Online-Analyse der Zusammensetzung des Reaktionsgasgemischs. Aufgrund der beiden Detektoren und der integrierten Methanisierungseinheit ist jedoch eine quantitative Analyse der Bestandteile eines Gasgemischs mit einer Abweichung von maximal 0,1 % möglich, so daß der Einsatz des GC zur integralen Analyse der Gaszusammensetzung und damit des Umsatzgrades der Reaktion sinnvoll sein kann. Für eine qualitative Untersuchung wird die GC-Analytik nicht benötigt.

5.5 Beschreibung des Meß- und Regelprogramms

Das Meß- und Regelprogramm für die Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* chemischer Reaktionen entstand innerhalb von nahezu drei Jahren Entwicklungsarbeit. Das Programm basiert auf dem Konzept der „state machine“ wie es z.B. von Jamal et al. (2001) beschrieben wird. Von einer zentralen Bedieneroberfläche aus lassen sich hiernach einzelne Unterprogramme direkt anwählen. Nach Beendigung der einzelnen Unterprogramme kehrt das System immer wieder zur Bedieneroberfläche zurück. In dieser Hinsicht ist das Programm vergleichbar zu Benutzeroberflächen wie z.B. „Windows“ der Firma Microsoft gestaltet. Das Programm ist jedoch bei weitem spezieller auf die eigentliche Anwendung, die Meßdatenerfassung und Regelung der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten, zugeschnitten und nicht für andere Anwendungen einsetzbar.

Es wurden insgesamt sieben einzelne Unterprogramme integriert, von denen fünf direkt zugänglich sind und ein sechstes (sog. Wartezustand) ständig aktiviert ist. Nach Ablauf eines der fünf Unterprogramme wird jeweils automatisch in den Wartezustand zurückgeschaltet. Das siebte Unterprogramm, das zur Datenerfassung nach einer Notfallabschaltung dient, wird, in Abhängigkeit des Betriebszustandes der Versuchsanlage, automatisiert angesteuert.

Grundsätzlich wird beim Start des Hauptprogramms ein kompletter Reset der Versuchsanlage durchgeführt. Darüber hinaus werden eine Reihe von physikalischen Konstanten und Kalibrierfaktoren geladen, die für alle Unterprogramme gleichermaßen verwendet werden. Für diese Werte ist eine Tabelle aus global definierten, d.h. für alle Programme des PC-Systems zugänglichen, Variablen angelegt. In dieser Tabelle sind alle Kalibrierfaktoren enthalten, die für die einzelnen Sensoren und Aktuatoren, die in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben wurden, ermittelt werden konnten. Bei Austausch eines Sensors oder Aktuators ist es somit nur notwendig, die entsprechenden Kalibrierfaktoren der Liste zu ändern.

Alle Unterprogramme, die Meßwerte erfassen sollen, sind nach dem gleichen Muster und mit den gleichen Routinen zur Meßwerterfassung, Kalibrierung und Aufbereitung der Daten aufgebaut, was die Wartung und Pflege der Programme erheblich erleichtert. Die Meßwerte werden dabei immer von vier Adressen des Meßaufnehmersystems gleichzeitig abgefragt und bilden einen Datenblock. Ein Datenblock beinhaltet 40 einzelne Meßwerte jedes Sensors, die digitalisiert und anschließend gemittelt werden. Je Lesevorgang werden demnach 160 Meßwerte gleichzeitig erfaßt.

Die Anzahl von 40 Meßwerten je Sensor ist willkürlich gewählt und läßt sich gegebenenfalls an neue Erfordernisse anpassen. Zur Zeit erweisen sich 40 Meßwerte jedoch als zuverlässiger und tragbarer Kompromiß aus Geschwindigkeit und Präzision der Messung.

Die Signale der Thermoelemente werden mit Hilfe eines in den Meßverstärker integrierten Halbleitertemperatursensors mit einer Kaltstellenkompensation versehen. Referenztemperatur ist hierbei die Umgebungstemperatur. Die Umrechnung der gemessenen Thermospannungen in Temperaturen in °C erfolgt mit Hilfe zweier Linearisierungspolynome 11. Ordnung (Quelle: NIST Monograph 175). Diese Polynome führen zu einer maximalen Abweichung von 0,01 % des Endwertes und sind abschnittsweise für Temperaturen von - 200 °C bis 400 °C sowie von 400 °C bis 1373 °C definiert. Je nach gemessener Thermospannung wird automatisch das für den Temperaturbereich korrekte Linearisierungspolynom verwendet. Ein Polynom niedrigerer Ordnung verkürzt die aufgewendete Rechenzeit nicht, reduziert jedoch die Genauigkeit der Umrechnung.

Die in den Datenblättern der verwendeten Druckaufnehmer angegebenen Kalibrierfaktoren werden zur Linearisierung und Umrechnung der gemessenen Gleichspannungssignale in Druckwerte verwendet.

Die an die Beheizung des Mikrostrukturapparates angelegte Spannung wird von 0,0 V bis 230,0 V skaliert. Eine entsprechende linearisierte Umrechnung von diesen Werten auf die Steuerspannungswerte 0,0 V DC bis 10,0 V DC ist in das Regelprogramm integriert und wurde mit Hilfe eines Präzisionsmultimeters überprüft.

5.5.1 Unterprogramm „Datensatz erstellen“

In diesem Unterprogramm werden grundlegende Daten wie Versuchsnummer, Seriennummer und Art des Mikrostrukturapparates, Art des Versuchs, eingesetzte Gasmischung und verwendeter Katalysator sowie einige andere Daten eingetragen und gespeichert. Das Programm erzeugt anschließend einen Dateiheder, also eine Kopfzeile für eine später anzulegende Datentabelle, in welche die aufgenommenen Meßwerte eingetragen werden. Der Header kann leicht durch Änderung des Unterprogramms „Datensatz erstellen“ an veränderte Anforderungen oder Versuchsbedingungen angepaßt werden.

5.5.2 Unterprogramm „Manuelle Steuerung“

Das Unterprogramm zur manuellen Steuerung erlaubt eine Steuerung aller Funktionen der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten direkt von einer Benutzeroberfläche aus.

Es werden dabei die Drücke des Reaktionsgasgemischs und des Kühlmediums sowohl vor als auch hinter dem Mikrostrukturapparat gemessen und angezeigt (P4 bis P7 aus Abbildung 5-1). Darüber hinaus werden insgesamt sechs Temperaturen gemessen (T1, T2, T4, T6, T7 und T8 aus Abbildung 5-1). Die Leistung der elektrischen Heizelemente kann mittels Vorgabe einer Ausgangsspannung eingestellt werden. Die Magnetventile MV1 und MV2 können unabhängig voneinander gesteuert werden, MV3 wird in Abhängigkeit der Position von MV2 automatisch nachgeführt, eventuell mit einer einstellbaren Schaltverzögerungszeit. Eine Anzeige der aktuellen Position der Magnetventile ist ebenfalls integriert.

Die Frequenz, mit der das Programm Daten abfragt oder Steuerimpulse aussendet, kann eingestellt werden. Ein minimaler Takt von 0,31 s ist möglich. Es werden die reale Laufzeit (d.h. die Zeit, die das Programm zur Abarbeitung der Befehle tatsächlich benötigt) sowie eine eventuelle Wartezeit angezeigt.

Da nicht zwingend jeder Datensatz, der gemessen wurde, auch gespeichert werden muß, läßt sich einstellen, nach wie vielen Sekunden ein Datensatz jeweils gespeichert werden soll. Unabhängig davon werden alle Durchläufe des Programms sowie die tatsächlich aufgezeichneten Datensätze gezählt.

Für den korrekten Ablauf des Programms muß eine Maximaltemperatur für den Mikrostrukturapparat vorgegeben werden, die gemessenen Werte von T4, T6, T7 und T8 werden mit dieser Temperatur verglichen. Sollte einer der Meßwerte höher sein als die Vorgabe, wird die Versuchsanlage automatisch abgeschaltet und das Unterprogramm „Datenaufnahme nach Nothalt“ wird aktiviert (vgl. Abschnitt 5.5.5 und 5.7).

5.5.3 Unterprogramm „Automatische Steuerung – Zeitsteuerung“

Das Unterprogramm zur automatischen Steuerung mit Zeitsteuerung funktioniert prinzipiell wie das in Abschnitt 5.5.2 beschriebene manuelle Steuerprogramm, weist jedoch einige Besonderheiten auf. So wird in diesem Unterprogramm jeder aufgenommene Datensatz auch abgespeichert – eine Auswahl wie in Abschnitt 5.5.2 beschrieben ist zwar möglich, aber nicht sinnvoll, da die automatische Steuerung eine Taktung der Temperatur im Subsekundenbereich zuläßt und der Temperaturverlauf dabei kontinuierlich aufgezeichnet werden sollte.

Ein im Vergleich zum Unterprogramm zur manuellen Steuerung zusätzlicher Schalter startet die automatische Taktung. Die Öffnungsdauer der Kühlpassage und die Schlußdauer der Kühlpassage können unabhängig voneinander eingestellt werden. Damit kann ein Split der Periodendauer in unterschiedlich lange Teilintervalle erzielt werden (vgl. Abschnitt 6). Diese Verfahrensweise war bisher mit keiner konventionellen Steuerung über z.B. Zeitgeber oder Regler erreichbar.

Die jeweilige Zeit, die das Magnetventil MV2 geöffnet oder geschlossen wird, wird vorgegeben. Magnetventil MV3 folgt jeweils automatisch mit einem in Millisekunden einstellbaren Zeitabstand. Standardmäßig ist dieser Zeitabstand auf 10 ms gesetzt, so daß keine relevante Schaltverzögerung auftreten sollte.

Mit dem Schaltvorgang eines Ventils wird ein Startzeitwert ermittelt und zwischengespeichert. Im Takt des Programmablaufs, also minimal alle 0,31 s, wird die Differenz aus aktueller Zeit und gespeichertem Schaltzeitpunkt ermittelt. Ist diese Differenz größer oder gleich der voreingestellten Öffnungsdauer oder Schlußdauer (Teilperiodendauer oder voreingestellter Split), wird ein Schaltimpuls initiiert und das Heiz-/Kühlverhalten umgekehrt. Die reale Öffnungs- oder Schlußdauer wird gemessen und angezeigt.

Das Unterprogramm arbeitet wie eine klassische Steuerung, weist also keinen Regelkreis auf und wird nicht auf die Messung eines Regelsignals hin abgestimmt.

Aus den bei Versuchen zum thermischen Verhalten von *FTC*-Mikrostrukturapparaten gewonnenen Daten (vgl. Abschnitt 6) läßt sich erkennen, daß die voreingestellten und die gemessenen Zeiten nicht übereinstimmen – in der Regel ist die reale Teilperiodendauer länger als die voreingestellte. Die Abweichung kann maximal den Wert der eingestellten Taktzeit des gesamten Unterprogramms annehmen – wenn nämlich im aktuell laufenden Zyklus die voreingestellte Teilperiodendauer gerade noch nicht erreicht war, im nächsten Zyklus jedoch überschritten wird. Dazu kommt noch die eingestellte Schaltverzögerungszeit je Magnetventil. Die Schaltdauer der Ventile selber liegt, laut Herstellerangaben, im Bereich von 3 ms bis 5 ms und ist daher nicht relevant. Die Erfahrung zeigt, daß im Mittel die Abweichung der tatsächlich gemessenen Teilperiodendauer von der voreingestellten Teilperiodendauer etwa 0,1 s bis 0,2 s beträgt. Dieser Wert kann für Teilperiodendauern von mehreren Sekunden vernachlässigt werden, während er bei Teilperiodendauern im Subsekundenbereich selbstverständlich berücksichtigt werden muß.

Zusätzlich zur automatischen Zeitsteuerung der Magnetventile MV2 und MV3 kann das Magnetventil MV1 manuell geöffnet und geschlossen werden oder automatisch für eine einstellbare Dauer geöffnet werden. Die automatische Öffnung erfolgt 10 ms nach dem Schließen des Magnetventils MV2.

Mit Öffnen des Ventils MV1 wird ein Pressluftpuls mit einem Druck von etwa 1,0 MPa durch die Kühlpassage des Mikrostrukturapparates geleitet. Dieser Puls reinigt die Mikrokanäle vom verbleibenden Kühlmedium und minimiert so den Holdup sehr effizient. Dadurch wird die thermische Masse des Mikrostrukturapparates wirksam vermindert und die Aufheizrate erhöht (vgl. Abschnitt 4.1.1). Eine Dauer von etwa 200 ms für diesen Pressluftpuls hat sich in zahlreichen Versuchen bewährt.

5.5.4 Unterprogramm „Automatische Steuerung – Temperatursteuerung“

Dieses Unterprogramm arbeitet ähnlich wie das Unterprogramm zur Zeitsteuerung. Im Unterschied zu dem in Abschnitt 5.5.3 beschriebenen Unterprogramm wurde jedoch ein Regelkreis integriert, wenn auch mit beträchtlicher Regelabweichung.

Als Regelsignal kann entweder die an T3 oder die an T5 gemessene Temperatur oder der arithmetische Mittelwert aus den Temperaturen T3 und T5 verwendet werden. Wie aus Abbildung 5-1 zu erkennen ist, werden beide Temperaturen innerhalb des Mikrostrukturapparates gemessen.

Der gewählte Meßwert wird mit einem vorgegebenen oberen und unteren Grenzwert verglichen. Übersteigt der Meßwert den oberen Grenzwert, wird das Magnetventil MV2 geöffnet und ein Kühlvorgang eingeleitet. Unterschreitet der Meßwert den unteren Grenzwert, wird MV2 geschlossen und ein Aufheizvorgang eingeleitet.

Die jeweilige Aufheiz- oder Abkühlzeit sowie die tatsächlich erzielte Maximal- oder Minimaltemperatur wird gemessen und aufgezeichnet. Das Magnetventil MV3 folgt MV2 analog zu dem schon in Abschnitt 5.5.3 beschriebenen Verhalten, ebenso das Magnetventil MV1, welches für den Pressluftpuls verwendet wird.

Das Verfahren hat den Vorteil, eine beliebige Temperaturdifferenz zwischen Maximal- und Minimalwert einstellen zu können, ohne sich auf Temperaturkennlinien verlassen zu müssen, die für jeden neuen Typ von Mikrostrukturapparat neu erstellt werden müssen. Unabhängig vom eingesetzten Mikrostrukturapparat wird immer mindestens die gewünschte Temperaturdifferenz erreicht – im Regelfall erzielt man eine höhere Temperaturdifferenz, da im schlechtesten möglichen Fall eine Taktperiode des Gesamtprogramms, also minimal 0,31 s, zu lange gekühlt oder beheizt wird.

Aus den in Abschnitt 6 gezeigten Ergebnissen läßt sich jedoch erkennen, daß die Abweichungen nur wenige Grad betragen und daher bei den in der vorliegenden Arbeit vorgenommenen qualitativen Grundlagenuntersuchungen nicht ins Gewicht fallen. Für präzisere Messungen, die auch genaue Temperaturverläufe einbeziehen sollten, muß allerdings die Meß- und Regelhardware dahingehend optimiert werden, daß schnellere Regelkreise aufzubauen sind. Eine Möglichkeit wäre z.B. die Integration eines schnellen, auf das spezielle thermische Verhalten von Mikrostrukturapparaten abgestimmten Leistungsreglers, wie er von Li (2002) beschrieben wird.

Grenzen sind diesem Verfahren auch bezüglich der voreingestellten Versorgungsspannung der Heizelemente gesetzt. Bei sehr hohen Spannungswerten wird die untere Grenztemperatur möglicherweise nicht mehr erreicht, was zu einem ständigen Verbleib in der Abkühlphase führt. Eine Anpassung der Versorgungsspannung muß vorgenommen werden. Auch hierfür könnte die Integration eines schnellen Regelkreises für die Versorgungsspannung sowie die Verwendung von schnellen, regelbaren Leistungsthyristoren in der Spannungsversorgung Abhilfe schaffen. An dieser Stelle soll auf die genannten Möglichkeiten nicht weiter eingegangen werden.

5.5.5 Unterprogramm „Datenaufnahme nach Nothalt“

Alle bisher beschriebenen Unterprogramme enthalten einen Temperaturvergleich der gemessenen Temperatur des eingesetzten Mikrostrukturapparates mit einem vorgegebenen oberen Grenzwert. Sollte dieser Grenzwert erreicht oder überschritten werden, wird das entsprechende Unterprogramm automatisch beendet, die Ausgabewerte, z.B. die Steuerspannung für die Stromversorgung der Heizelemente, auf die Grundwerte initiiert und das Unterprogramm „Datenaufnahme nach Nothalt“ gestartet.

Dieses Programm dient ausschließlich zur Datensicherung und dem kontrollierten Abkühlen des Mikrostrukturapparates, es können keinerlei Steuerungen oder Regelungen vorgenommen werden. Die Magnetventile MV1 bis MV3 werden automatisch in ihre Grundstellung geschaltet und in diesem Zustand gehalten, die Steuerspannung für die Stromversorgung der Heizelemente wird auf konstant 0,0 V gehalten und ist für die Bedienung gesperrt. Temperaturen und Drücke werden weiterhin wie bisher gemessen und aufgezeichnet, im vorliegenden Fall jedoch nur noch mit einer Programmtaktrate von 1,0 Hz. Jeder dreißigste Datensatz wird aufgezeichnet. Optische und akustische Warnsignale zeigen an, daß ein Notfall eingetreten ist und die Versuchsanlage in einen kontrollierten Zustand gebracht wird.

5.5.6 Unterprogramm „Datenscreening“

Das Unterprogramm „Datenscreening“ dient zur schnellen Übersicht der aufgenommenen Temperaturdaten. Die Signalverläufe der Temperaturen T3, T7 und T8 (vgl. Abbildung 5-1) eines beliebig auswählbaren, zuvor gespeicherten Datensatzes werden auf dem Bildschirm dargestellt.

5.6 Funktionsweise der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten

Die Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten wird in der Regel halbautomatisch betrieben. Während sowohl der Volumenstrom des Reaktionsgasgemischs als auch der Volumenstrom des Kühlmediums manuell eingestellt werden müssen, erfolgt die Steuerung der übrigen Anlagenteile mit Hilfe der in den vorherigen Abschnitten beschriebenen Programmteile, die, nach einmaligem Start, auch vollautomatisch ablaufen können. Es ist zur Zeit jedoch nicht zu empfehlen, die Anlage ohne Aufsicht zu betreiben.

Zunächst werden beim Betrieb die Magnetventile MV1 bis MV3 in die korrekten Positionen geschaltet, so daß das Reaktionsgasgemisch durch den Mikrostrukturapparat strömt und das Kühlmedium durch die Bypassleitung am Mikrostrukturapparat vorbei fließen kann. Anschließend kann mit Hilfe der Steuerspannung die Leistung der in den Mikrostrukturapparat integrierten Heizelemente auf einen konstanten Wert eingestellt werden. Infolge dessen steigt die Temperatur des Mikrostrukturapparates, ein Aufheizteilzyklus beginnt.

Während des gesamten weiteren Versuchs wird die gewählte elektrische Heizleistung konstant gehalten.

Um nun den Abkühlteilzyklus zu starten, wird entweder manuell, in Abhängigkeit der voreingestellten Zeit oder in Abhängigkeit der Temperatur, wie in den Abschnitten 5.5.2, 5.5.3 und 5.5.4 beschrieben, zunächst das Magnetventil MV2 geöffnet und damit die Kühlpassage des Mikrostrukturapparates mit einem Wärmeübertragerfluidstrom beaufschlagt. 10 ms nach dem Öffnen von MV2 wird das Magnetventil MV3 und damit die Bypassleitung geschlossen. Das Wärmeübertragerfluid strömt durch die Kühlpassage des Mikrostrukturapparates und die Temperatur des Mikrostrukturapparates sinkt.

Zum Start eines neuen Aufheizteilzyklus wird, wiederum in Abhängigkeit der genannten Werte, zunächst das Magnetventil MV3 und damit die Bypassleitung geöffnet, 10 ms danach wird MV2 geschlossen. Das Wärmeübertragerfluid strömt durch den Bypass am Mikrostrukturapparat vorbei, die Temperatur des Mikrostrukturapparates beginnt wiederum zu steigen.

In verschiedenen Experimenten zeigte sich, daß der - wenn auch geringe - Holdup an Wärmeübertragerfluid innerhalb des Mikrostrukturapparates das Aufheizverhalten des Mikrostrukturapparates verlangsamt, da der Holdup mitgeheizt werden muß und dabei, je nach Temperaturbereich, eventuell verdampft wird.

Das Aufheizverhalten des Mikrostrukturapparates in den Aufheizteilzyklen wird daher, wie schon zuvor beschrieben, durch Einbeziehen des Magnetventils MV1 verbessert: 10 ms nach dem Schließen von MV2 wird MV1 für eine voreinstellbare Zeitspanne geöffnet. Ein Pressluftpuls mit einem Druck von etwa 1,0 MPa reinigt den Mikrostrukturapparat von noch verbliebenen Resten des Wärmeübertragerfluids und reduziert somit effizient die thermische Masse (vgl. Abschnitt 4.1.1).

Eine periodische Wiederholung der beschriebenen Vorgänge führt zu einer zyklischen, sehr gut steuerbaren Temperaturänderung des Mikrostrukturapparates zwischen zwei einstellbaren Extremwerten oder mit einstellbaren Teilperiodendauern. Maximal kann eine Frequenz der Abfolge aus Aufheizen und Abkühlen von 1,6 Hz erzielt werden – höhere Frequenzen lassen die verwendeten Hardwarekomponenten des Meß- und Regelsystems nicht zu. Die sich dabei einstellende Temperaturerhöhung bzw. Abkühlung ist eine Funktion der an die Heizelemente angelegten Versorgungsspannung.

In Abhängigkeit des zu untersuchenden Reaktionssystems stellt sich jedoch die Frage, ob es sinnvoll ist, die angegebene Maximalfrequenz anzuwenden, oder ob eine niedrigere Frequenz nicht ausreichend ist.

5.7 Sicherheitseinrichtungen

Die Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten ist mit mehreren unabhängigen Sicherheitssystemen ausgestattet.

Zunächst läßt sich die Versuchsanlage nur dann vollständig in Betrieb setzen, wenn verschiedene Voraussetzungen erfüllt sind. So muß der Förderdruck des Kühlmediums kleiner als 1,4 MPa sein, wobei die Durchflußmenge mindestens $5,0 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ betragen muß. Ein Drucksensor P2 und ein Durchflußmesser MFM3 dienen der Überwachung.

Ein Durchflußmesser MFM2 mißt das Strömungsvolumen des Wärmeübertragerfluids zwischen mobiler Kühleinheit und Pumpe, welches immer zwischen minimal $0,5 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ und maximal $72,0 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ liegen muß.

Die Temperaturen T4 und T6 des Mikrostrukturapparates müssen unterhalb einer vorgegebenen Grenztemperatur liegen. Der Wert dieser Grenztemperatur ist standardmäßig auf $300 \text{ }^\circ\text{C}$ eingestellt, kann aber beliebig variiert werden, um diese Sicherheitseinrichtung an die Gegebenheiten des gerade untersuchten Prozesses anzupassen.

Die Eintrittstemperatur des Reaktionsgasgemischs T2 und die Eintrittstemperatur des Wärmeübertragerfluids T1 dürfen nur innerhalb eines genau definierten Temperaturbereichs liegen.

Die Meßsignale aller soeben beschriebenen Sensoren werden an jeweils ein von der Anlage zum *thermisch instationären Betrieb* unabhängiges externes Anzeigegerät geleitet, das über mindestens ein Alarmrelais verfügt. An die Alarmrelais ist eine Durchgangsleitung angeschlossen, die die Steuerspannung für Lastrelais zur Ansteuerung sowohl der Sicherheits-Magnetventile der Gasversorgung als auch der Stromversorgung der Heizelemente des Mikrostrukturapparates liefert.

Sollte auch nur einer der genannten Sensoren ausfallen oder ein Meßwert nicht im definierten Bereich liegen, wird automatisch sowohl die elektrische Beheizung des Mikrostrukturapparates als auch die Zufuhr der Reaktionsgase abgeschaltet und verriegelt – eine Behebung des Fehlers und ein manuelles Anfahren der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten in einem genau überwachten Zustand ist dann erforderlich.

Alle Stromkreise, die zur Versorgung irgendwelcher Komponenten der Versuchsanlage zum *thermisch instationären Betrieb* von Mikrostrukturapparaten verwendet werden, sind mit Hilfe von Fehlerstromschutzschaltungen gegen elektrische Fehler geschützt – der maximal mögliche Fehlerstrom wurde zu 12 mA bei 15,3 V gemessen, die Abschaltzeit beträgt im Durchschnitt 24 ms.

Wie schon in den vorhergehenden Abschnitten angesprochen, weist auch das Meß- und Regelprogramm selbst zahlreiche Sicherheitsabfragen wie z.B. die Abfrage von zu hohen Temperaturen oder zu hohen Drücken, zu niedrigen Durchflußwerten usw. auf. Alle Sicherheitsabfragen innerhalb des Meß- und Regelprogramms führen im Fehlerfall zu einer automatischen Abschaltung und dem Start des Unterprogramms „Datenaufnahme nach Nothalt“ (vgl. Abschnitt 5.5.5).