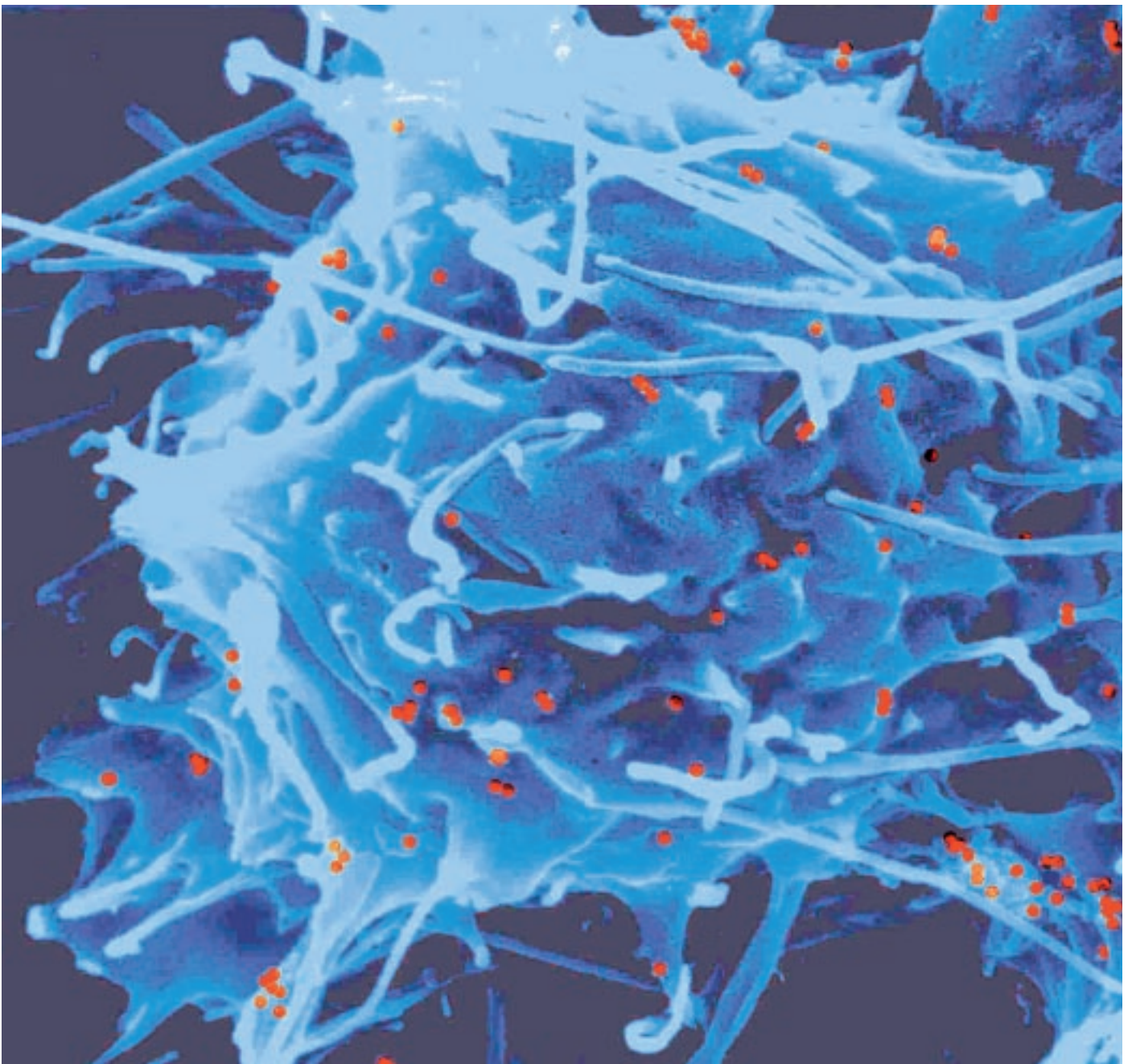




Forschungszentrum Karlsruhe  
Technik und Umwelt

# NACHRICHTEN



Jahrgang 33 • 4/2001

Interdisziplinäre Forschung

**Im Inhaltsverzeichnis verwendete  
Abkürzungen:**

IAI	Institut für Angewandte Informatik
IHM	Institut für Hochleistungsimpuls- und Mikrowellentechnik
IKET	Institut für Kern- und Energietechnik
IMB	Institut für Medizintechnik und Biophysik
IMT	Institut für Mikrostrukturtechnik
ITG	Institut für Toxikologie und Genetik

**Herausgeber:**

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640 · D-76021 Karlsruhe  
Telefon-Nr. (07247) 82-0

**Redaktion:**

Dr. Klaus Körting

**Redaktionsbeirat:**

Prof. Dr. Johannes Blümer  
Dr. Wolfgang Breitung  
Prof. Dr. Eckhard Dinjus  
Dr. Jürgen Gspann  
Dr. Joachim Hoffmann  
Dr. Heiko Kleykamp  
Dr. Rolf Krieg  
Prof. Dr. Ulrich Schurath (Vorsitzender)  
Dr. Karl-Friedrich Weibezahn

**Grafik und Satz:**

Stolz Grafisches Atelier · Karlsruhe

**Layout:**

Tassilo Schnitzer

**Druck:**

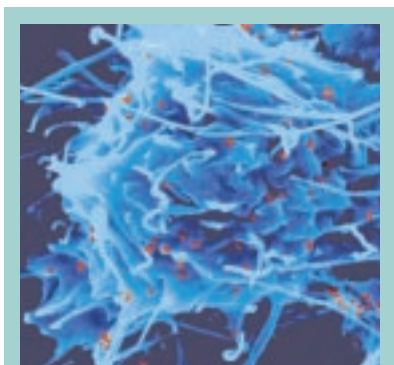
Wilhelm Stober GmbH · Eggenstein

Nachdruck mit Genehmigung des  
Forschungszentrums Karlsruhe GmbH  
unter Nennung der Gesellschaft und  
des Autors gestattet. Beleg erbeten.

Die NACHRICHTEN können kostenlos  
über die Hauptabteilung Bibliothek  
und Medien des Forschungszentrums  
bezogen werden.

Printed in the Federal Republic of  
Germany

Gedruckt auf chlorfrei gebleichtem Papier



**Titelbild:**

Ein Makrophage (blau) frisst Hämatitpartikel (rot): Zellforschung und Nanotechnologie im Verbund (vgl. den Artikel von H. F. Krug et al. auf Seite 305)

---

# Inhalt / Contents

## ■ Interdisziplinäre Entwicklung neuer Polymeroberflächen für Zellkulturen und Implantate 295

### Interdisciplinary Development of New Polymer Surfaces for Cell Culture Applications and Implants

A. Welle, IMB

We studied plasma treatments (PECVD) and UV irradiation of cell culture substrates with respect to physico/chemical surface modifications and cell adhesion. PECVD allowed the adjustment of cell adhesion in a wide range. UV treatment yielded peroxides together with carboxylic groups which were identified by X-ray photoelectron spectroscopy and other analytical methods. Hepatocytes and fibroblasts adhered strongly on the irradiated polymers. Masked irradiations opened a simple, fast, and economical route to obtain chemically patterned polymeric substrates for structured cell adhesion.

## ■ Molekulare Umwelttoxikologie – ein interdisziplinärer Ansatz 305

### Molecular Environmental Toxicology – an Interdisciplinary Approach

H.F. Krug, S. Diabaté, S. Strack, ITG

Molecular environmental toxicology is based on fundamental research but has also strong application-oriented research trends. All research fields, from molecular biology to biotechnology or the estimation of ecological systems are in demand. The toxicological department is co-operating with biological, chemical and physic institutes to investigate the adverse health effects of ultra-fine particles, additionally it does research on anti-tumour drugs and on new methods within the area of genetic engineering to get tools for the investigation of toxic effects in living cells.

## ■ Impact-Simulationen auf der Mikro- bis Nanometerskala 316

### Impact Simulations on the Micro- to Nanometerscale

J. Gspann, IMT; M. Hase, Universität Stuttgart, Institut für Thermodynamik der Luft- und Raumfahrt;  
Y. Yamaguchi, IMT und Tokyo University, Department of Mechanical Engineering

Molecular dynamics simulations of hypervelocity impacts of clusters of a thousand CO<sub>2</sub> molecules, or of Ar atoms, on diamond reveal a fluidization of the impacted material, allowing a nearly complete impact crater relaxation. This explains the smoothness of the cluster eroded surfaces in micro- or nanostructuring applications. The more effective erosion of diamond by reactive accelerated cluster erosion (RACE) using CO<sub>2</sub> clusters and the superior smoothness achieved by Ar cluster erosion show up as well. Complex craters with a central peak are observed with submicron projectiles, with meteorites, and in volume-of-fluid simulations of low-speed droplet collisions.

---

---

■ **Hochtemperatur-Supraleiter und die neuen Chancen für das Magnetische Schweben**  
**High-Temperature-Superconductors and the New Chances for Magnetic Levitation**

325

V. Jung

Critical current densities of the high- $T_c$  superconductor YBaCuO of  $10^6$  A/cm<sup>2</sup> at 1 T and 77 K opened up new application areas at selfstabilising superconducting magnetic bearings as well as for magnetic levitation systems with motions along a given track. High current densities require a very good texture of the melt-textured YBaCuO form-pieces which have to be free of microcracks as well. A narrow width of the distribution of the orientations of the crystallite axes without an isotropic contribution allows to induce nearly the complete mirror flux of permanent magnets in the superconductor. For applications in levitated trains such as the Transrapid the technology is not available yet.

■ **Fortschritte bei der Erzeugung und Fokussierung intensiver, eigenfelddominierter gepulster Strahlen leichter Ionen**  
**Progress in the Production and Focussing of Intense Selffield-Dominated Pulsed Light Ion Beams**

335

H. Bluhm, P. Hoppé, IHM

Intense light ion beams are promising tools for matter research, inertial fusion energy research and radiation therapy. These beams are generated with an accelerator consisting of two stages – the injector- and the post-accelerating-diode. Both accelerating stages operate at electric fields of a few MV/cm, much above those in conventional accelerators. The necessary electric power of a few TW is delivered to the accelerator from a MV pulse generator. In this contribution we describe the progress that has been achieved in the past years in our understanding of the physical processes in the injector diode. To a large degree this progress is based on the development of new diagnostic methods and on the improvement of numerical and analytical models.

■ **Erlöschen brennender Partikel bei instabiler Verbrennung**  
**Extinction of Burning Particles due to Unstable Combustion Modes**

349

B. Peters, IKET

The objective of this paper is to derive analytically conditions under which burning particles extinguish. Experiments indicate that extinction may occur with a rapid drop in particle temperature, thus causing an insufficient burn-out. Both a qualitative and quantitative description of this phenomenon is presented in this study. These results enable engineers to assess the size of particles due to incomplete combustion, to apply appropriate filters or to change conditions favourable to further burn-out.

---

---

■ **Schritthaltende 3D-Kartierung zur mobilen Inspektion verfahrenstechnischer Anlagen**  
**On-line 3D Map Making and its Use for Plant Inspection by Mobile Robots**

355

P. Kohlhepp, IAI; D. Fischer, FH Offenburg

This paper proposes cooperative mobile robots for the routine inspection and condition based maintenance of chemical plants. For this purpose, the vehicles need robust, on-line 3D map making and self-localization from multiple range or infrared views. Unlike previous approaches, the registration and fusion of sensor data works on sparse surface graphs only. Thus, the surface map is at hand for symbolic action planning while being extended by new sensor data. Localization is achieved by bounded tree search, iterative refinement of surface assignment and pose, and an evolutionary algorithm on top. Reconstruction results from real range data show that segmentation errors are tolerated. The system has a potential for real-time operation.

---

---

---

# Interdisziplinäre Entwicklung neuer Polymeroberflächen für Zellkulturen und Implantate

A. Welle, IMB

## Forschung an den Grenzen der Wissenschaften

Es ist zu beobachten, dass Fortschritte heute immer seltener aus der Kernkompetenz *einer einzelnen* Naturwissenschaft entspringen. Die Zeiten, da gewaltige Industrien (Stahl, Kunststoffe, Halbleiter) auf einer einzelnen Naturwissenschaft basierten, sind nach Ansicht vieler Experten vorüber. Vielmehr wird heute neues Wissen immer häufiger an den Grenzen zwischen den einzelnen Naturwissenschaften gesammelt. Weiterhin bildet sich in der nationalen [1] und internationalen Forschungslandschaft ein immer deutlicher werdender Themenschwerpunkt in der *Biologie* aus. Nach Angaben der AAAS [2] verdreifachte sich, ausgehend von einem nahezu identischen Finanzvolumen der Sparten Physik, Ingenieurwissenschaften und Biologie, in den letzten 3 Jahrzehnten das Budget der „Life Sciences“, während die beiden anderen Disziplinen auf dem Stand von 1970 stagnierten. Diese Entwicklung bewirkt, dass sich viele nicht-biologische Disziplinen, wie beispielsweise Physik, Materialwissenschaften und Informatik, derzeit verstärkt biologischen Fragestellungen zuwenden und in diesem Bereich äußerst wichtige Impulse liefern. Die bekannte Entwicklung der HGF und des Forschungszentrums Karlsruhe im Lauf der letzten Jahre verdeutlicht das in perfekter Weise [3].

Ein aktuelles Beispiel für derartige biologierelevante, interdisziplinäre Forschungsprojekte ist

die Entwicklung neuer Polymere für *in vitro* Zellkulturen und medizinische Implantate. Dabei spielen nicht nur gedankliche und methodische „Grenzen“ zwischen mehreren Naturwissenschaften eine Rolle, sondern die Eigenschaften einer realen Grenzfläche, hier zwischen dem künstlichen Substrat einerseits und lebenden Zellen andererseits, die im Zentrum des Interesses mehrerer Wissenschaftler aus verschiedenen Instituten des Forschungszentrums stehen.

## Oberflächen und Grenzflächen aus biologischer Sicht

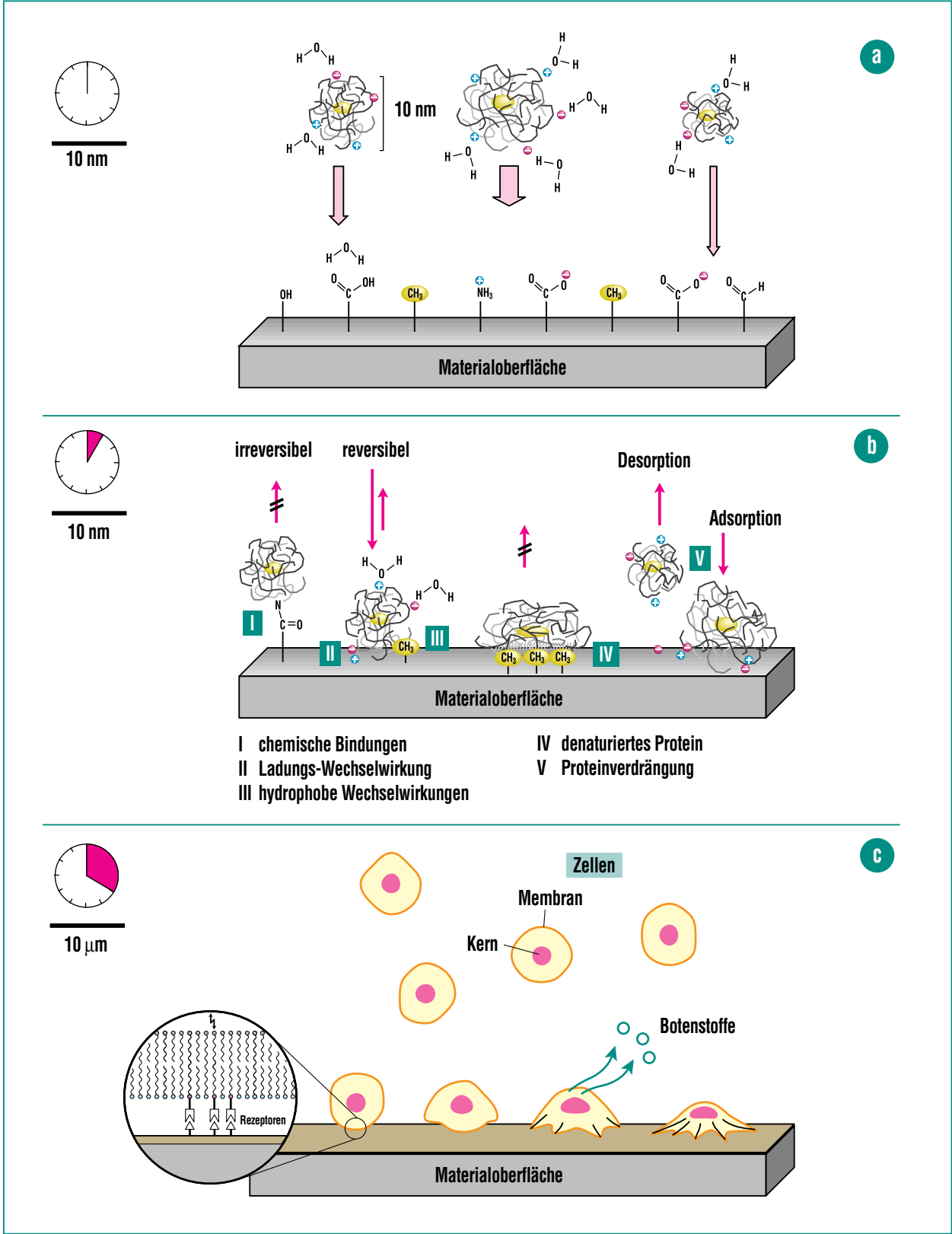
Sowohl bei medizinischen Implantaten, wie beispielsweise künstlichen Herzklappen, Kathetern und Zahnfüllungen, als auch bei Trägern für *in vitro* Zellkulturen sind neben den Volumeneigenschaften des verwendeten Materials (Härte, Elastizität, Permeabilität, Wasseraufnahme, etc.) insbesondere die Eigenschaften der *Materialoberfläche* wie Rauigkeit, Benetzbarkeit, chemische Zusammensetzung, Ladung, Mobilität und so weiter von größter Bedeutung. Ursache dafür ist, dass an der Materialoberfläche wichtige Vorgänge ablaufen, die entscheidend für die Verträglichkeit oder Abstoßung des Materials sind. Diese Prozesse, die etwa bei dem Kontakt einer Implantatoberfläche mit Blut und Gewebe *in vivo*, aber auch in einer Zellkultur ablaufen, sind äußerst komplex. Leo Vroman schrieb 1971 „... we have calculated on the basis of our present progress that the combined studies proposed above will require

$10^7$  years.“ [4]. In der Tat sind diese Vorgänge bis heute noch nicht vollkommen verstanden, können jedoch in groben Zügen, wie im folgenden Kasten, dargestellt werden.

Wie in den Abbildungen 1a-c skizziert, wird die Zellantwort auf ein angebotenes Substrat von dessen physikalischen und chemischen Oberflächeneigenschaften ausgelöst, und über eine adsorbierte Proteinschicht an die Zelle weitergeleitet. Die einzelnen Schritte sind sowohl zeitlich als auch nach ihrer Größenordnung gestaffelt:

Diffusionskontrolliert, und daher im Bereich von deutlich weniger als einer Millisekunde, erreichen kleine Proteine, wie Albumin, die im Kulturmedium gelöst vorliegen, die Substratoberfläche und treten mit ihr in Wechselwirkungen. Diese Wechselwirkungen beruhen auf elektrostatischen und dispersiven (van der Waals-) Kräften sowie zum Teil auch auf Wasserstoffbrücken und auf chemischen Bindungen. Die Verdrängung von gebundenen Wassermolekülen von der Substratoberfläche und aus der Hydrathülle der gelösten Proteine (Abb. 1a) stellt einen hohen Entropiegewinn dar, der Enthalpieeffekte überkompensiert. Bei den meisten Substratmaterialien überwiegen die attraktiven Wechselwirkungen, so dass daraus eine *Proteinadsorption* auf dem Substrat resultiert.

Nach einer gewissen Verweilzeit können die adsorbierten, flexiblen Proteinmoleküle mehr und mehr deformiert werden und dabei weitere Bindungen zum Sub-





### Abb. 1: Proteinadsorption und Zelladhäsion an Biomaterialoberflächen

a) Ausgangssituation: Biomaterialien können eine Vielzahl verschiedener chemischer Gruppen an der Oberfläche tragen. Wichtige sind: Hydroxyl-, Carboxyl-, Alkyl-, Amino- und Aldehydgruppen. Proteine bestehen aus langen Polypeptidketten die durch Faltung und Quervernetzung des Strangs eine bestimmte Tertiärstruktur einnehmen, wobei hydrophobe Bereiche des Moleküls bevorzugt im Zentrum des Knäuels, hydrophile und geladene Gruppen dagegen an der Außenseite sitzen. Hydrophile Gruppen des Biomaterials und des Proteins sind von assoziierten Wassermolekülen umgeben.

b) Entstehung und Veränderung des Proteinadsorbates: Gelöste Proteine erreichen durch Diffusion rasch die Biomaterialoberfläche und treten mit ihr in Wechselwirkung. Wichtige Mechanismen dieser Wechselwirkung sind: Ausbildung kovalenter Bindungen, wie zum Beispiel zwischen Amino- und Carboxylgruppen des Substrats (nahezu irreversibel). Elektrostatische Anziehung zwischen negativen und positiven Ladungen. Hydrophobe Wechselwirkungen zwischen Alkylgruppen. Obwohl diese Wechselwirkungen reversibel sind, können sie doch so stark werden, dass die native Faltungsform des Proteins zerstört wird. Sind verschiedene Proteine zugegen, können schwach gebundene kleinere Proteine von größeren Proteinen durch „Unterwanderung“ während temporärer Lösung einzelner Bindungen von der Substratoberfläche verdrängt werden.

c) Zelladhäsion: Zellen erreichen die Oberfläche des Biomaterials erst, nachdem bereits ein charakteristischer Proteinfilm gebildet wurde. Rezeptoren in der Zellmembran erkennen die Aminosäuresequenz und die Faltungsstruktur der adsorbierten Proteine. Dadurch werden Signale in das Innere der Zelle geleitet und die Zellen können auf einem geeigneten Substrat haften. Dabei verändert sich oft die Form der Zelle und wichtige Funktionen der Zelle (Stoffwechsel, Teilung, etc.) reagieren auf den Impuls von außen.

strat ausbilden. Dieser Effekt spielt insbesondere bei hydrophoben Oberflächen (Polyethylen, Polystyrol, fluorierte Polymere) eine große Rolle, da durch die Umorientierungen im Gerüst der adsorbierten Proteine günstige Wechselwirkungen zu den hydrophoben Proteinbereichen gebildet werden, die in wässriger Lösung durch die Faltung der Polypeptidkette besonders im Kernbereich des Moleküls zu finden sind. Bei hoher Packungsdichte der Proteine spielen zusätzlich zu den Protein/Substrat-Wechselwirkungen auch Protein/Protein-Wechselwirkungen innerhalb des Adsorbates eine Rolle (Gelbildung). Beide Wechselwirkungen machen die Desorption eines Proteinmoleküls, die eine simul-

tane Lösung der zahlreichen Bindungen erfordert, immer unwahrscheinlicher. Durch die Deformation und Blockierung aktiver Zentren wird aber auch die biologische Funktion des adsorbierten Proteins gestört, es wird denaturiert (siehe Bild 1b, Mitte).

In der Realität liegen, beispielsweise in Blutplasma und Zellkulturmedien, komplexe Proteingemische aus oft mehr als einhundert Einzelproteinen vor. Durch die kompetitive Adsorption der zahlreichen Proteine mit jeweils unterschiedlich starken Substratbindungen und Kinetiken wird das Bild wesentlich komplizierter. Große Proteine wie Fibrinogen und Fibronectin, die durch ihre geringere Diffusionsge-

schwindigkeit die Substratoberfläche etwas später erreichen, sind teilweise in der Lage die bereits adsorbierten Proteine in einem Zeitbereich von wenigen Minuten zu verdrängen, indem sie die Oberflächenplätze, die durch teilweise Ablösung kleinerer Proteine temporär freierwerden, besetzen und damit die kleineren Proteinmoleküle „unterwandern“ (Bild 1b, rechts). Daraus resultiert eine zeit- und konzentrationsabhängige Zusammensetzung der adsorbierten Proteinschicht.

Wie in Abb. 1c gezeigt, erreichen Zellen die Materialoberfläche erst, nachdem sie bereits von dem Proteinadsorbat bedeckt ist. Damit ist dieser Proteinfilm die eigentliche Oberfläche, die von den

Zellen „analysiert“ und möglicherweise zur Anhaftung verwendet wird. Wie in Abb. 1c skizziert, verläuft auch die Zellanhaftung in mehreren Phasen, wobei zunächst einige Ligand/Rezeptor-Bindungen zwischen der Zelle und der Proteinschicht gebildet werden, die im weiteren Verlauf unter Deformation der Zellmembran zahlreicher und fester werden. Dabei formieren sich die zunächst einzelstehenden Rezeptoren zu größeren Bündeln, die die Zelle sehr fest verankern. Die Umgebung der Zelle, bestehend aus adsorbierten Proteinen und Nachbarzellen, bewirkt neben Strukturänderungen der Zellmembran weitere wichtige Impulse auf die gesamte Zelle (Organisation von Aktin-Cytoskelettfasern, die die Zelle resistenter gegen angreifende Scherkräfte machen; Ausschüttung von Botenstoffen sowie die Beeinflussung der Zellteilung und der Stoffwechselaktivität). Diese Abhängigkeit der Vitalität einer Zelle von ihrer Umgebung kann so weit gehen, dass Einzelzellen in Suspension absterben oder zumindest ihre physiologische Funktionen (Differenzierungszustand) nahezu vollständig verlieren.

Da das Proteinadsorbat auf einem Zellkultursubstrat, wie erläutert, die Haftung und Vitalität einer Zelle unmittelbar steuert, wird oft versucht einen klar definierten Protein- oder Peptidfilm durch eine gesteuerte Kopplung an die Substratoberfläche zu erzielen. Dieser Weg ist jedoch experimentell extrem aufwendig, da das möglichst reine Protein bzw. Peptid unter schonenden Reakti-

onsbedingungen fest an das Substrat gebunden werden soll [5].

Schließlich wirken bei der Besiedelung eines Kultursubstrates auch die haftenden Zellen selbst aktiv auf eine vorhandene Proteinschicht ein, indem sie eigene Haft- bzw. Matrixproteine freisetzen und das bestehende Proteinadsorbat teilweise abbauen oder verändern. Daher erscheint es nicht immer sinnvoll die Zusammensetzung des Proteinadsorbates durch aufwendige Immobilisationstechniken zu diktieren, sondern vielmehr technisch einfachere chemische Modifikationen der Substratoberfläche vorzunehmen und die spontane Bildung des Proteinadsorbates auszunutzen. Hierbei ist jedoch problematisch, dass bis heute oft nur empirische Zusammenhänge zwischen den einstellbaren Oberflächenparametern und der Proteinadsorption bzw. Zelladhäsion bekannt sind. Es bleibt zu hoffen, dass die verstärkten interdisziplinären Anstrengungen dazu beitragen dieses Gebiet nicht erst nach Leo Vromans Hochrechnung in Millionen Jahren zu verstehen.

### Oberflächenmodifikation zur Steuerung der Biokompatibilität

Der häufig gebrauchte Begriff Biokompatibilität wird je nach Verwendung eines Materials mitunter vollkommen gegensätzlich definiert. In der Orthopädie wird bei Gelenkprothesen am Metallschaft des Gelenks eine maximale Haftung der Knochenzellen gewünscht, um das Implantat im

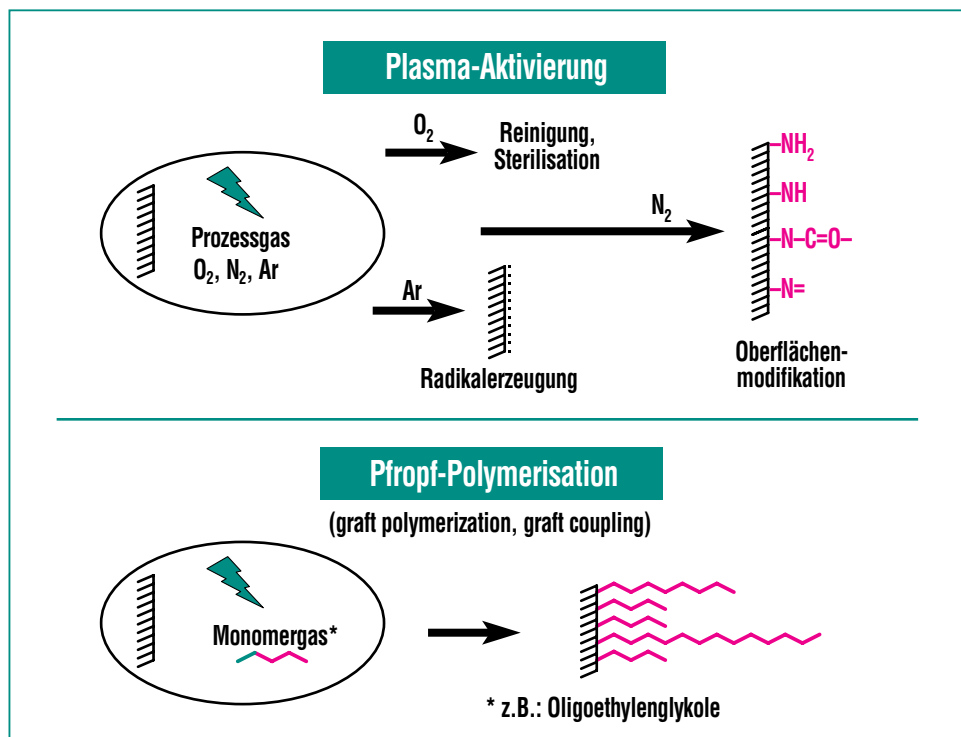
Skelett zu verankern. Im Gegensatz dazu muss bei vielen anderen Implantaten wie Stents<sup>1)</sup>, Herzklappen, verschiedenen Kathetern im cardiovascularen und urologischen Bereich, aber auch bei Kontaktlinsen die Zellhaftung unterdrückt werden. Die Anhaftung von Blutplättchen löst die Gerinnungskaskade aus, die zu Thrombosen und Embolien führen kann. Auch die Haftung von Bakterien auf Implantatoberflächen kann katastrophale Folgen für den Patienten haben, da Bakterien effektive Strategien entwickelt haben, die zur Ausbildung eines zähen Biofilms führen, der den Keimen optimale Lebensbedingungen bietet und sie vor der Wirkung von Antibiotika schützt. Endokarditis, eine bakteriell ausgelöste Entzündung nach Herzklappenersatz, macht in vielen Fällen die Entfernung der Klappe erforderlich.

Diese Beispiele verdeutlichen, dass die universelle Definition von Biokompatibilität per se noch keine Aussage zur Zelladhäsion liefert, sondern die erwünschten Substrat/Zell-Wechselwirkungen von dem jeweiligen Einsatzgebiet des Produkts abhängig sind.

Am Institut für Medizintechnik und Biophysik werden derzeit verschiedene Verfahren untersucht, die sowohl die Unterdrückung als auch die Steigerung der Zelladhäsion auf Kunststoffoberflächen ermöglichen. Eine Technik zur Modifikation von Polymeroberflächen basiert auf verschiedenen Varianten der Plasma-Aktivierung (siehe Abb. 2, oben) oder der „Plasma Enhan-

<sup>1)</sup> Gefäßstützen, die in verengte Blutgefäße eingebracht werden und sie von innen aufhalten sollen.

ced Chemical Vapor Deposition, PECVD“ (Propf-Polymerisation, Abb. 2, unten), das heißt der Abscheidung gewünschter Verbindungen aus der Gasphase unter Einwirkung eines kalten Plasmas [6-8]. Hauptbestandteil der PECVD Anlage, die ursprünglich in der Silicium-Mikrolithographie eingesetzt wurde, ist die Behandlungskammer mit zwei eingebauten Elektroden, daneben der Radiofrequenzgenerator sowie Vakuumpumpen, Steuerungs- und Gasversorgungseinrichtungen. Zur Plasmabehandlung werden die Proben über eine Schleuse in die Kammer eingebracht, die anschließend auf unter 0,05 Torr evakuiert wird. Nachdem Gasmischung und Druck in der Kammer eingestellt und eventuell ein Polymer-Precursor in der Kammer verdampft wurde, wird durch die Hochfrequenzanregung (13,56 MHz, max. 300 W) eine Gasentladung erzeugt. Die energiereichen freien Radikale, die aus dem Hilfsgas (im Allgemeinen Stickstoff oder Argon) und dem verdampften Precursor gebildet werden, sowie die freien Elektronen des Nichtgleichgewichtsplasmas<sup>2)</sup> und die emittierte UV-Strahlung wirken auf die Probenoberfläche ein. Dabei wird, wie in Abb. 2 oben dargestellt, das eingesetzte Polymer-substrat an seiner Oberfläche chemisch verändert werden (Bildung von Carboxyl-, Aminogruppen, etc.). Bei einer Plasma-behandlung mit einem Inertgas werden Radikale an der Polymeroberfläche erzeugt, die die kova-



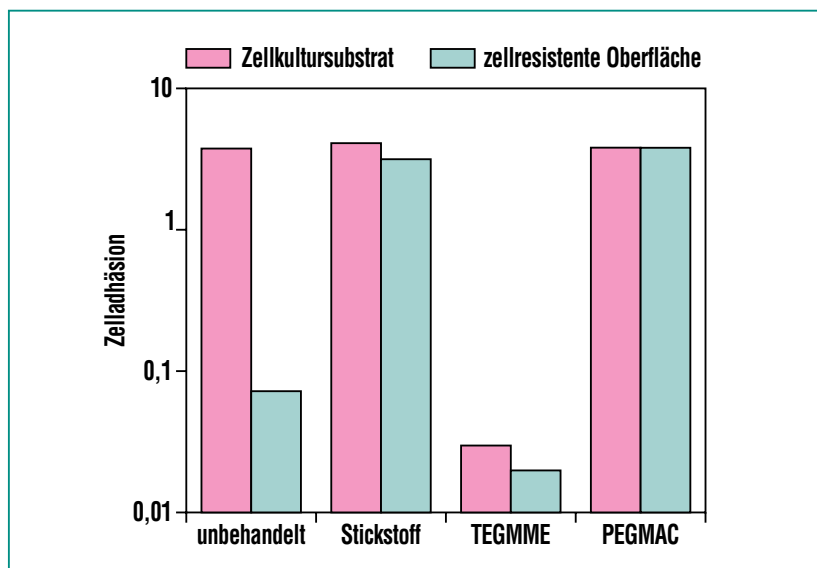
**Abb. 2: Möglichkeiten der Modifizierung von Polymeroberflächen durch Plasmaverfahren. Oben: Reinigung, Sterilisation, Erzeugung einfacher chemischer Gruppen und Radikale an der Polymeroberfläche. Unten: Propf-Polymerisation neuer Polymere auf das Substrat.**

lente Ppropfung eines neuen Polymers *ex situ* ermöglichen („post plasma graft coupling“). Es kann auch ein vollkommen neues Polymer (aus dem gasförmigen Precursor) an die Oberfläche des Substrates gepropft werden („graft polymerization“), siehe Abb. 2 unten.

Die hergestellten Beschichtungen sind, je nach Wahl des eingesetzten Prozessgases oder Polymerprecursors sowie des Gesamtgasdruckes, der Gasflussraten und der Anregungsleistung, entweder sehr zellabstoßend oder stimulierend auf die Zellhaftung. Wird Tri(ethylenglykol)-

monomethylether (TEGMME) in der Kammer verdampft und mit Stickstoff als Hilfsgas und geringer Leistungsdichte ein Polymerisat auf dem Substrat abgeschieden, bildet sich ein weniger als  $1\mu m$  dünner Film, der extrem resistent gegenüber Zelladhäsion ist (Abb. 3). Wird dagegen ausschließlich Stickstoff als Prozessgas oder Stickstoff zusammen mit Poly(ethylenglykol)methacrylat (PEGMAC) als Precursor verwendet, werden Filme gebildet welche die Zellhaftung unterstützen (Abb. 3). Als Substrate und Vergleichsmaterialien dienten in diesen Experimenten kommerzielle Polystyrolproben, die je nach

<sup>2)</sup> Die Bezeichnung Nichtgleichgewichtsplasma soll hervorheben, dass zwischen den freien Elektronen und den Ionen kein thermisches Gleichgewicht herrscht. Das Plasma ist im Gegensatz zu Flammen und Lichtbögen kalt.



**Abb. 3: Beeinflussung der Zelladhäsion durch verschiedene Plasmapbehandlungen.**

Von links nach rechts: Zahl haftender Hepatozyten auf zwei unbehandelten kommerziellen Referenzproben (Polystyrol, PS). Rot: Zellkultursubstrat. Grün: Zellabweisendes PS).

Die folgenden Balkenpaare stellen die Zellhaftung auf den beiden Substraten nach Behandlung mit einem Stickstoffplasma sowie nach plasmaunterstützter Abscheidung von Tri(ethylenglykol)monomethylether, TEGMME bzw. Poly(ethylenglykol)methacrylat, PEGMAC dar. TEGMME Beschichtungen sind extrem zellabweisend und übertreffen die unbehandelte zellabweisende Referenzprobe. PEGMAC Beschichtungen machen auch ursprünglich ungeeignete Proben sehr zellfreundlich.

Herstellungsverfahren zellabweisend bzw. zellfreundlich sind (jeweils grüne bzw. rote Balken in Abb. 3). Insbesondere die hervorragende Unterdrückung der Zellhaftung durch TEGMME-PECVD ist für einige der oben genannten Anwendungsgebiete in der Medizin sehr vielversprechend.

Die Resistenz einiger ähnlicher Polyethylenglykolschichten gegenüber Proteinadsorption und somit auch Zellanlagerung ist bereits seit Jahren bekannt [9] und

wird mit besonderen Molekularstrukturen dieser Filme erklärt, die jedoch im Detail noch nicht ganz verstanden sind. Es ist aber offensichtlich, dass der Zustand der PEG<sup>3)</sup>-Schicht in Form eines Hydrogels wichtig für diese Effekte ist. Hydrogele bestehen aus losen und flexiblen Polymerketten, die große Mengen relativ fest eingelagerter Wassermoleküle enthalten [10]. Nähert sich ein Proteinmolekül aus der Lösung diesen Oberflächen, werden die Poly-

merknäuel zusammengepresst und entwässert. Beide Vorgänge bewirken eine Abstoßung des Proteinmoleküls und verhindern so die Proteinadsorption an der Materialoberfläche („steric repulsion“). Da auch die Zellen keine Haftproteine auf der Oberfläche deponieren können, wird durch die aufgebrachte Polyethylenglykolschicht die Zelladhäsion wirksam unterdrückt.

Auffallend und zunächst überraschend ist jedoch, dass trotz einer relativ ähnlichen chemischen Struktur des Precursors Poly(ethylenglykol)methacrylat im Vergleich zum Tri(ethylenglykol)monomethylether (durchschnittlich 6 Ethylenglykol-Wiederholeinheiten in PEGMAC und 3 EG-Einheiten in TEGMME) die beobachteten Zellantworten auf die abgeschiedenen Filme vollkommen verschieden sind. Es ist sehr wahrscheinlich, dass die Acrylgruppen des PEGMAC durch die Plasmaanregung aktiviert werden und das abgeschiedene Polymerisat quervernetzen. Dadurch wird sowohl das Quellvermögen und die Wasseraufnahme, als auch die freie Beweglichkeit der einzelnen Polymerstränge blockiert. Trotz nahezu identischer chemischer Zusammensetzung wirken die „steric repulsion“-Effekte nicht mehr und Proteinadsorption sowie Zelladhäsion auf dem Substrat sind möglich.

Durch Steuerung der PECVD Parameter sollte es möglich sein, die Quervernetzung und damit die mikromechanischen Eigen-

<sup>3)</sup> Die Verhältnisse bei kurzkettingen Oligo(ethylenglykol)-(OEG) Monolagen sind nicht mit dem einfachen Modell der „steric repulsion“ das hier verwendet wird, erklärbar. Bei OEG-Schichten spielt zusätzlich die Packungsdichte und damit die Konformation der OEG-Kette (all-trans oder helikal) eine Rolle. PECVD-Poly(ethylenglykol)-Schichten sind amorph.

schaften der Polymerbeschichtung zu steuern. Eine für die Zellkultur optimale Oberfläche müsste die Charakteristika beider Beschichtungen kombinieren, indem sie Adhäsionspunkte (z.B. in Form geladener Gruppen) für Proteine und Zellen trägt, die flexibel an das Substrat gebunden sind. Damit soll erreicht werden, dass sich die Adhäsionspunkte der Protein- und in gewissem Umfang der Zell-Geometrie anpassen können, ohne Denaturierung bzw. mechanischen Stress auszulösen. Zusätzlich sollte ein hoher Wassergehalt im Hydrogel vorliegen, um durch möglichst gute Diffusion eine gute Sauerstoff- und Nährstoffversorgung der Zellen zu gewährleisten. Selbstverständlich müssen auch technologische und biologische Anforderungen (einfache Herstellung, keine Cytotoxizität) erfüllt sein.

Die zweite angewandte Methode nutzt energiereiche ultraviolette Strahlung mit  $\lambda = 185 \text{ nm}$ , um Kunststoffoberflächen (untersucht wurden Polycarbonat, Poly(methylmethacrylat) und Polystyrol) zu aktivieren und chemisch zu modifizieren [11]. Durch die Bestrahlung mit UV-Licht werden an der Polymeroberfläche kurzlebige Radikale<sup>4)</sup> und stabile Carboxylatgruppen erzeugt. Da die chemischen Veränderungen bei der UV-Belichtung lediglich in der äußersten Schicht des Polymers stattfinden, eignen sich nur oberflächensensitive Analysemethoden, wie Kontaktwinkelmessungen, Farbstoffbindung und die Röntgenphotoelektronen-

spektroskopie zur Detektion. In Abb. 4 ist das Kohlenstoff-Photoelektronenspektrum<sup>5)</sup> einer UV-behandelten Polycarbonatprobe gezeigt. Zusätzlich zu den bereits bei unbehandelten Proben auftretenden Peaks 1 und 2 zeigt der hinzugekommene dritte Peak die entstandenen Carboxylgruppen

an. Durch Kontaktwinkelmessungen konnte gezeigt werden, dass es sich um deprotonierbare Carbonsäuregruppen handelt. Tab. 1 zeigt, dass die UV-Belichtung bereits ohne eine Nachbehandlung zelladhäsionsfördernd wirkt.

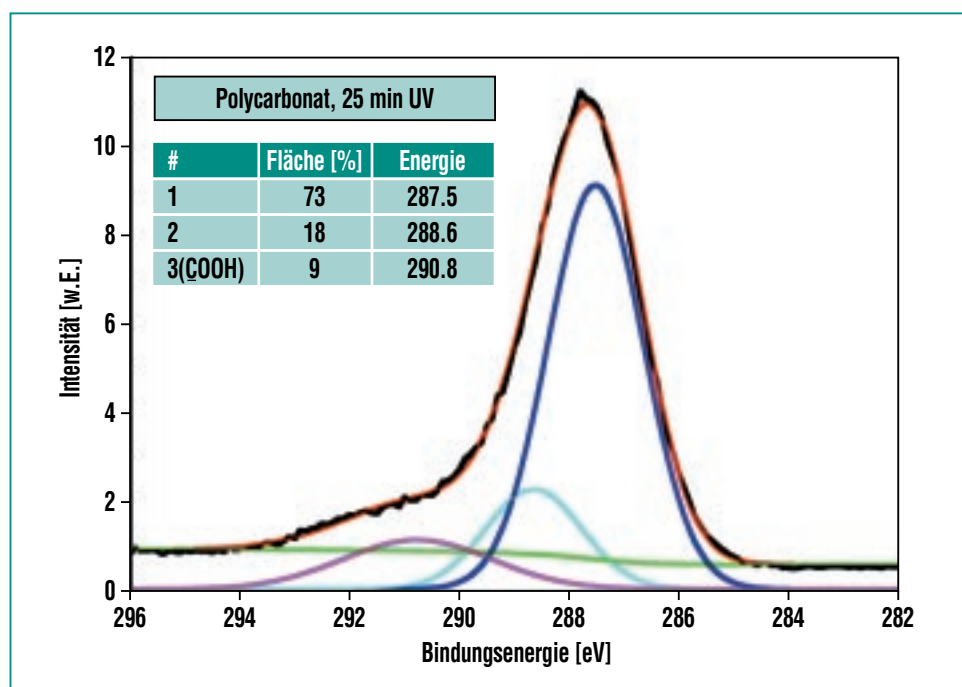


Abb. 4: C1s-Photoelektronenspektrum einer UV-belichteten Polycarbonatoberfläche. Die Hauptpeaks 1 (blau) und 2 (cyan) stammen von den verschiedenen Kohlenstoffspezies im Polycarbonat. Peak 3 bei 290,8 eV Bindungsenergie ist dem Kohlenstoff der erzeugten Carbonylgruppen zuzuordnen.

UV-Belichtungszeit (min)	0	2	5	20	60
Zellhaftung L929	2%	89%	97%	98%	98%
Zellhaftung HepG2	6%	25%	77%	99%	99%

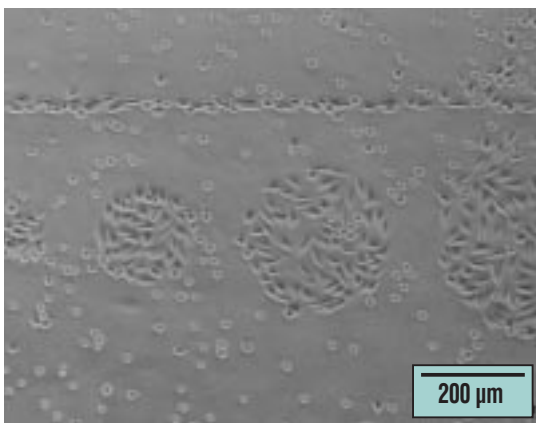
Tab. 1: Anteil haftender Zellen im Vergleich zur Menge der insgesamt aufgebrauchten Zellen (Mausfibroblasten L929, sowie humane Hepatomzelllinie HepG2). Substrat: Polystyrol ohne Vorbehandlung sowie nach unterschiedlichen UV-Belichtungszeiten.

<sup>4)</sup> Die gebildeten Radikale ermöglichen analog zum „post plasma grafting“ eine kovalente Anbindung gewünschter Substanzen.

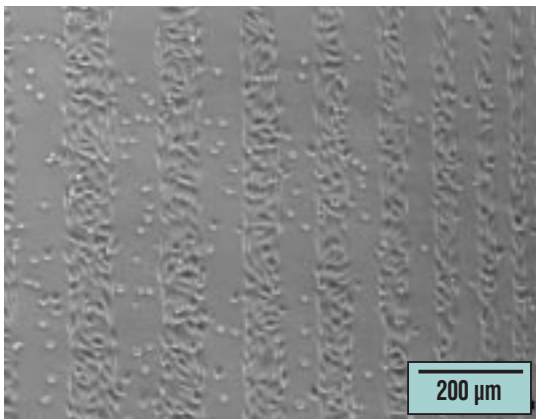
<sup>5)</sup> Die Verschiebung von ca. 1,5 eV gegenüber den Referenz-Peaks ist auf die Aufladung der isolierenden Probe zurückzuführen.

## Strukturierung von Oberflächen

Ein besonders wichtiger Aspekt der photochemischen Oberflächenmodifikation durch UV-Bestrahlung ist die Möglichkeit der



**Abb. 5:** Fibroblasten (L929) auf modifiziertem Polystyrol. 30-minütige UV-Belichtung einer Linie und mehrerer Kreise. Phasenkontrastaufnahme lebender Zellen 3 Stunden nach Beginn der Zellkultur. Maßstab: 200μm. Die Zellen haften auf den UV-belichteten Bezirken und flachen sich dabei ab. Auf unbelichteten Bezirken bleiben die Zellen rund und sind durch Mediumwechsel zu entfernen.



**Abb. 6:** Fibroblasten (L929) auf modifiziertem Polystyrol. 30-minütige UV-Belichtung mit Streifenmuster. Phasenkontrastaufnahme lebender Zellen 3 Stunden nach Beginn der Zellkultur. Maßstab: 200μm.

einfachen Erzeugung strukturierter Oberflächen<sup>6)</sup> zur lateralen Steuerung der Zelladhäsion. An derartigen Strukturierungen wird derzeit an verschiedenen Stellen intensiv geforscht [12-17], da sie zur Untersuchung neuronaler Zellen und Netzwerke, Cokulturen verschiedener Zellen und der embryonalen Organentstehung gebraucht werden und wichtige Werkzeuge im Bereich des „Tissue Engineering“ darstellen. Die Mehrheit der heute angewandten Techniken zur chemischen Mikrostrukturierung basieren entweder auf der spontanen Bildung von Thiol-Monolagen („self assembled monolayers“, SAM) auf Edelmetallen oder Silanen auf Glas, wobei die Struktur oft durch miniaturisierte Stempel („micro contact printing“) vorgegeben, oder durch Laserablation in einen kontinuierlichen SAM geschrieben wird [16, 18-20]. Obwohl Kunststoffsubstrate sehr häufig für Zellkulturen verwendet werden, existieren wenige Publikationen über die Strukturierung dieser Substrate. Viele der vorgestellten Verfahren sind im Vergleich zu der UV-Bestrahlung mittels der Metall/Quarz-Maske sehr aufwendig (Sauerstoffplasma-Behandlung unter Zuhilfenahme konventioneller Photoresisttechnologie [15]), oder sie erreichen nur geringe Ortsauflösung (Kohlenstoffabscheidung aus der Gasphase [21]).

Da gezeigt werden konnte, dass die chemischen Veränderungen der Polymeroberflächen nicht durch die Wirkung von Ozon,

sondern durch die Bestrahlung selbst ausgelöst werden, lag es nahe unter Verwendung entsprechender Masken Muster im Größenbereich weniger Mikrometer zu erzeugen, die eine räumliche Kontrolle der Zelladhäsion erlauben. Wie in den Abb. 6 und 7 gezeigt, lagern sich Zellen, in diesem Fall L929-Mausfibroblasten, nur an den belichteten Stellen an. Dieser Effekt ist bereits kurz nach Aufgabe der Zellsuspension zu erkennen. Zellen, die auf unbelichtete Bezirke der Probe sedimentiert sind, bleiben rund und haften nicht am Substrat an, so dass sie beim Wechsel des Kulturmediums weggeschwemmt werden. Besondere Vorteile des vorgestellten Verfahrens sind seine Unkompliziertheit, die geringen Kosten des Substratmaterials, die Vermeidung jeglicher chemischer Behandlungen, die ein Kontaminationsrisiko darstellen, die Raumkompatibilität und die gute Auflösung.

## Zusammenfassung und Ausblick

Biologische Vorgänge an Oberflächen haben erstaunlich weitreichende Konsequenzen<sup>7)</sup>. Besonders offensichtlich sind diese Prozesse beim Einsatz von Implantaten in unserem Körper. Für derart lebenswichtige Anwendungen stehen bisher nur sehr wenige Materialien zur Verfügung, die noch keineswegs optimal sind, wie beispielsweise das hohe Risiko (ca. 30%) einer chronischen

<sup>6)</sup> Zum Patent angemeldet.

<sup>7)</sup> Wahrscheinlich spielen Gesteins- oder Tonoberflächen eine wichtige Rolle bei der eigentlichen Entstehung lebender Systeme in der „Ursuppe“ [22].

Infektion eines Dauerkatheters zeigt. Über diese Spezialgebiete hinaus sind Wechselwirkungen zwischen biologischen Systemen und künstlichen Oberflächen weniger offensichtlich, jedoch praktisch allgegenwärtig, wie folgende Beispiele aus verschiedensten Dimensionen zeigen sollen: Vom störendem Wachstum von Mikroorganismen und Muscheln an Schiffsrümpfen das mit hochtoxischen Verbindungen (TBT) bekämpft wird; über die gezielte Bakterienbesiedlung von Trägermaterialien (Rieselkörpern) für die Abwasserbehandlung (wie auch für die Essigherstellung) und Suspensionskulturen von Zellen in Bioreaktoren zur Gewinnung von Pharmazeutika bis hin zu kariesverursachenden, bakteriellen Biofilmen auf Zähnen. Allen Beispielen ist gemeinsam, dass komplexe, gestaffelte Adsorptionsvorgänge ablaufen, sobald die Oberfläche des künstlichen Materials mit einer biologischen Umgebung in Kontakt kommt. Diese Prozesse führen in der Regel zur Bildung eines wenige Nanometer dicken Proteinfilms. Die Zusammensetzung dieses Proteinadsorbats und der Zustand der gebundenen Proteine wird von den Zellen, die das Fremdmaterial umgeben, erkannt und steuert die -erwünschte oder unerwünschte- Haftung der Zellen am Substrat sowie deren Differenzierung und Vitalität.

Mit Hilfe der vorgestellten Verfahren können verschiedene Polymeroberflächen so modifiziert oder mit einem geeigneten Polymer überzogen werden, dass die Anhaftung von Zellen in die er-

wünschte Richtung gesteuert werden kann:

- Durch plasmagestützte Gasphasenabscheidung geeigneter Polymere, und auch durch Bestrahlung mit kurzwelligem ultraviolettem Licht, wurden sehr zellfreundliche Oberflächen erhalten. Die UV-Bestrahlung beinhaltet zusätzlich eine praktikable Möglichkeit der Strukturzeugung, die für einige Anwendungen wichtig ist.
- Eine hohe Zellresistenz wurde durch eine plasmagestützte Gasphasenabscheidung unsubstituierter Polyethylenglykole (TEGMME) erreicht.

In Zukunft werden die Ansprüche an geeignete Oberflächen durch die Miniaturisierung drastisch steigen. Je kleiner die geplanten Analysen- oder Zellkultursysteme werden, desto wichtiger werden schon aus geometrischen Gründen ihre Oberflächen. Dies trifft insbesondere für Bauteile für die Mikrofluidik, Bioanalytik und mikrostrukturierte Zellkultursubstrate zu. Der *de novo* Aufbau eines kompletten und funktionierenden Organersatzes erfordert nicht nur eine möglichst realitätsnahe Architektur, bestehend aus verschiedenen Zelltypen, einer Gefäßversorgung, etc., sondern auch eine sehr präzise Anpassung der Zellkulturbedingungen (verwendete Zellarten, teilweise Konzentrationsgradienten usw.) und insbesondere der Oberfläche des künstlichen Zellkultursubstrates. Daher ist die weitere Erprobung der Beschichtungen unter klinischen Bedin-

gungen bzw. in anspruchsvollen Zellkulturmodellen, die Organe simulieren, ein vorrangiges Ziel. Zu den geplanten Einsatzgebieten zählen sowohl dreidimensionale Mikrostrukturen aus Polycarbonat der Poly(methylmethacrylat) [23], zweidimensionale Träger zur Kultur von Nervenzellen, als auch verschiedene intrakorporale medizintechnische Systeme. Daneben sollen immunologische Identifizierungen der adsorbierten Proteine und Bestimmungen der Vitalität immobilisierter Zellen einen weiteren Schritt zum besseren Verständnis der Zell/Substrat-Interaktionen liefern. Diese Untersuchungen sollen durch die Infrarotspektroskopie ergänzt werden, um das Proteinadsorbat möglichst detailliert zu charakterisieren.

## Danksagung

Nur die interdisziplinäre Zusammenarbeit zwischen mehreren Instituten machte diese Arbeit möglich.

Ich möchte mich bei den zahlreichen Kolleginnen und Kollegen bedanken, die durch ihren Einsatz zu dieser Arbeit beigetragen haben: Leo Hörner, Siegfried Horn, Josef Schweinfurter (IMB); Joachim Schulz und Paul Abaffy (IMT); Michael Bruns, Hanns Klewe-Nebenius und Hans Deutsch (IFIA); Marian Dirschka und Ullrich Stahl (IFIA); Olaf Fuhr, Thomas Koch und Hartmut Gliemann (INT) und viele weitere innerhalb und außerhalb des Forschungszentrums.

## Literatur

- [1] BMBF, *Biotechnologie*, <http://www.bmbf.de/foerde01/forschung/3-2-5-1.htm>, 2000
- [2] M.L. Green, *MRS Bull.*, 2001. 26(1), S. 3.
- [3] U. Knapp, *Nachrichten – Forschungszentrum Karlsruhe*, 2000. 32(1-2), S. 7.
- [4] L. Vroman, et al., *Federation Proceedings*, 1971. 30(5), S. 1494.
- [5] H. Sigrist, et al., *Opt. Engin.*, 1995. 34(8), S. 2339.
- [6] E. Piskin, *J. Biomater. Sci. Polym. Edn.*, 1992. 4(1), S. 45.
- [7] C. Oehr, et al., *Surf. Coat. Technol.*, 1999. 116-119, S. 25.
- [8] J. Piglowski, et al., *Biomaterials*, 1994. 15(11), S. 909.
- [9] S. Nagaoka, et al., in *Polymers as Biomaterials*, S.W. Shalaby, et al., Editors. 1984, Plenum Press: New York. p. 364.
- [10] Z. Xu, R.E. Marchant, *Biomaterials*, 2000. 21(10), S. 1075.
- [11] A. Welle, et al., *Structured Polymeric Substrates for Cell Culture Applications*, Jan 2001, in preparation
- [12] S.N. Bhatia, et al., *Biotechnol. Prog.*, 1998. 14, S. 378.
- [13] R. Singhvi, et al., *Science*, 1994. 264, S. 696.
- [14] T. Bohanon, et al., *J. Biomater. Sci. Polym. Edn.*, 1996. 8(1), S. 19.
- [15] E. Deraït, et al., *J. Neurosci. Methods*, 1998. 84(1-2), S. 193.
- [16] M. Mrksich, *Chem. Soc. Rev.*, 2000. 29, S. 267.
- [17] D.T. Chiu, et al., *Proc Natl Acad Sci U S A*, 2000. 97(6), S. 2408.
- [18] D.A. Stenger, et al., *J. Am. Chem. Soc.*, 1992. 114, S. 8435.
- [19] C.N. Dulcey, et al., *Science*, 1991. 252, S. 551.
- [20] H.G. Craighead, et al., *J. Biomed. Microdevices*, 1998. 1(1), S. 49.
- [21] M. Kaibara, et al., *J. Biomed. Mat. Res.*, 1996. 31(3), S. 429.
- [22] P.v. Sengbusch, *Welche Voraussetzungen müssen für eine Entstehung lebender Systeme gegeben sein?*, [http://www.rz.uni-hamburg.de/biologie/b\\_online/d41/41b.htm](http://www.rz.uni-hamburg.de/biologie/b_online/d41/41b.htm), 1999
- [23] G. Knedlitschek, et al., *J. Biomed. Eng.*, 1999. 121, S. 35.

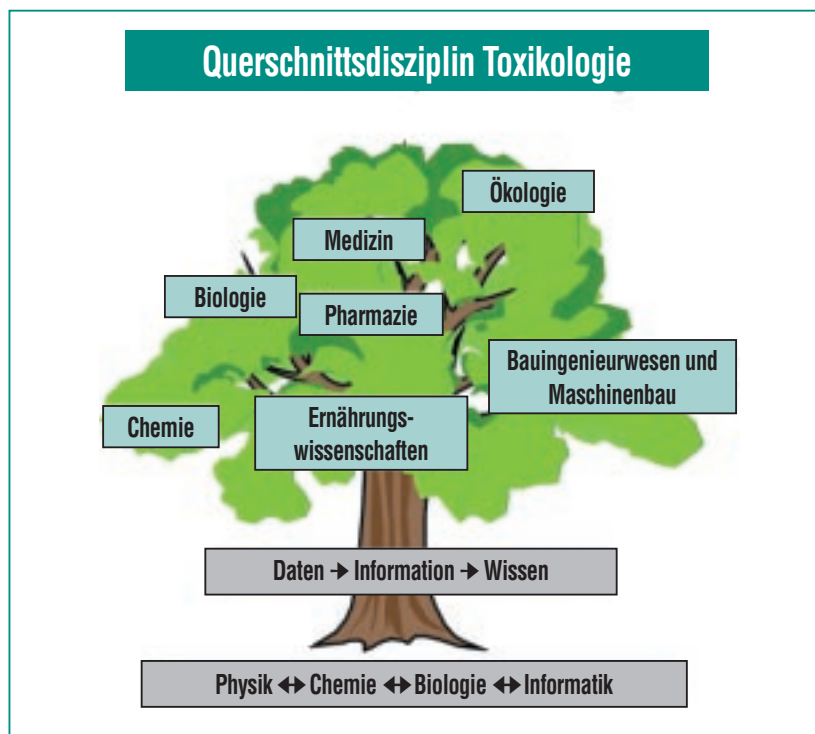


# Molekulare Umwelttoxikologie – ein interdisziplinärer Ansatz

H.F. Krug, S. Diabaté, S. Strack, ITG

Interdisziplinäre Forschung: eine Philosophie, ein Kunststil, ein Artefakt oder ein Antidot? So könnte die Frage provokativ gestellt sein, aber die molekulare Umwelttoxikologie – sowohl grundlagen- als auch anwendungsorientiert – kommt ohne Interdisziplinarität nicht aus. Von der Molekularbiologie über die Biotechnologie bis hin zur Betrachtung von Ökosystemen ist hier alles gefragt. Die toxikologischen Arbeitsgruppen im Forschungszentrum arbeiten nicht nur mit biologischen, chemischen und physikalischen Instituten der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren (HGF) zusammen, um z.B. die gesundheitsschädlichen Wirkungen ultrafeiner Staubpartikel zu erforschen, sie sind mit der Tumorklinik in Freiburg dabei, Antitumormittel zu testen und setzen auf neue Methoden im Bereich der Gentechnik, die ihnen Hilfsmittel wie die fluoreszierenden Fusionsproteine an die Hand geben, um in lebenden Zellen toxische Wirkungen verschiedener Umweltchemikalien erfassen zu können. Anhand einiger prägnanter Beispiele soll das interdisziplinäre Vorgehen verdeutlicht werden.

Bereits der Titel – Molekulare Umwelttoxikologie – beinhaltet interdisziplinäre Elemente. Das Wort „molekular“ bezeichnet im wesentlichen die Absicht, Wirkungsmechanismen verschiedener toxischer Noxen auf molekularer Ebene aufzuklären und stellt gleichzeitig einen Bezug zur „Molekularbiologie“ her. Der Begriff „Umwelt“ stellt hier klar, dass im Vordergrund diejenigen Einflüsse bzw. Substanzen stehen, die

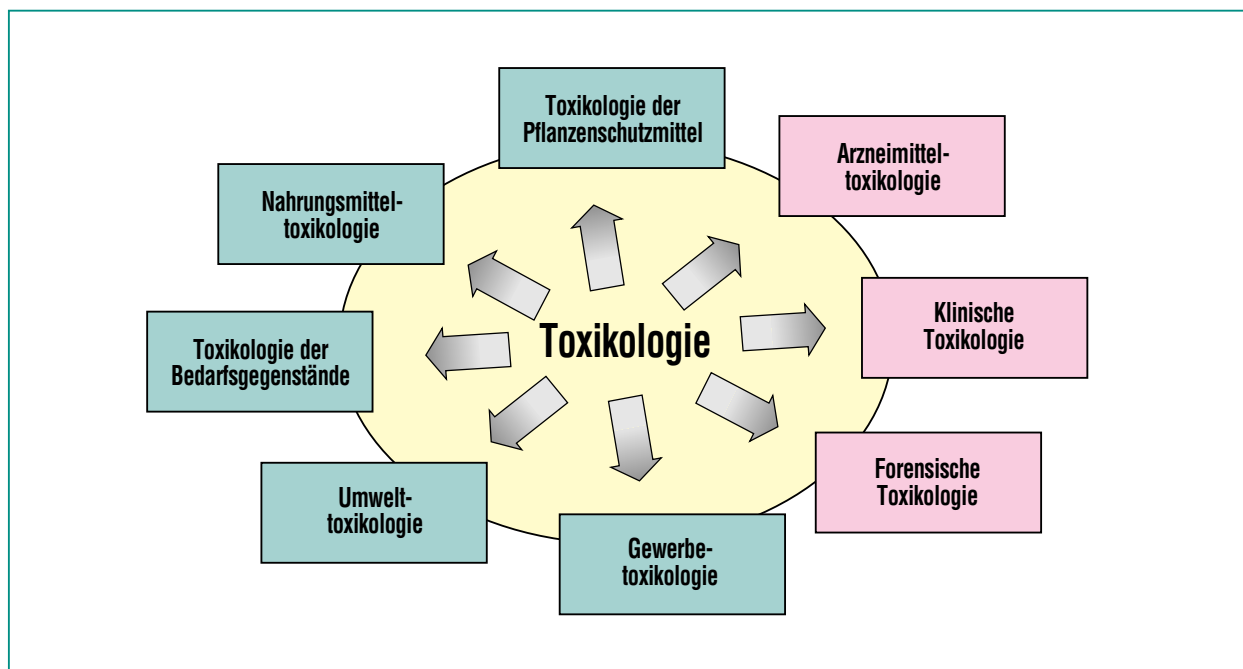


**Abb. 1: Toxikologie als Querschnittsdisziplin. Das Fachgebiet „Toxikologie“ kann sich nur als Querschnitt bzw. Summe aus vielen Einzeldisziplinen verstehen. Auf der Basis des Wissens aus Physik, Chemie und Biologie in Verbindung mit einer funktionstüchtigen Informatik wird daraus der Ausgangspunkt für eine wiederum in die anderen Disziplinen hineinwirkende Toxikologie.**

durch anthropogene Aktivitäten in die Umwelt gelangen und von dort auf lebende Organismen zurückwirken. Und letztlich sagt der Begriff „Toxikologie“ aus, dass damit schädliche Wirkungen gemeint sind, die unsere Lebensqualität direkt beeinträchtigen. Dabei ist die Toxikologie allein bereits ein Fachgebiet, das nicht klar umrissen werden kann und sich daher als eine „Querschnittsdisziplin“ darstellt. Die Grundlagen, die für ein Verständnis der Toxikologie notwendig sind, setzen sich aus den fundamentalen Kenntnissen der Physik, Chemie, Biologie, Medizin und Informatik zusammen. Die daraus gewonne-

nen Erkenntnisse und Daten führen zu einem verbesserten Wissen der Zusammenhänge, das von der Toxikologie innerhalb unterschiedlicher wissenschaftlicher Sektoren, wie Pharmazie und Medizin, Ernährungswissenschaften und Ökologie, aber auch z.B. im Bauwesen, angewandt wird (Abb. 1).

Auf dieser Basis baut die Fachdisziplin Toxikologie auf, wobei sie in eine Reihe weiterer Unterdisziplinen unterteilt werden kann. Grundsätzlich sind dabei grob zwei Richtungen zu unterscheiden: die eher medizinisch ausgerichteten toxikologischen Schwerpunkte (Abb. 2, rote Käst-



**Abb. 2: Die Teilgebiete der Toxikologie.** Die Umwelttoxikologie ist eines der vielen Teilgebiete der Toxikologie, wobei allerdings eine Reihe von Teilgebieten auch gleichzeitig in die Umwelttoxikologie als Oberbegriff hineinreichen (grüne Kästen). Die roten Kästen demonstrieren die medizinischen Teile der Toxikologie.

chen) und die auf die Umwelt des Menschen zielenden Disziplinen (grüne Kästchen), die im wesentlichen alle Produktionsvorgänge und Produkte, aber auch andere anthropogene Einflüsse beinhalten. In vielen Teilen überlappen diese Bereiche und aus der Vielfalt der Themen ergibt sich auch die Interdisziplinarität, die für unseren Institutsteil Toxikologie an einigen Beispielen genauer erläutert werden soll.

### Thema 1: Toxikologie der Metalle und ihrer Verbindungen

Die Metalle stellen die größte Gruppe umweltbelastender Einflüsse durch den Menschen [1]. Die Wirkung, die von ihren welt-

weiten anthropogenen Emissionen ausgeht, übertrifft dabei die aller organischen Substanzen als auch aller physikalischen Einflüsse, wie ionisierende und nicht-ionisierende Strahlung und Lärm. Neben der krebserzeugenden Wirkung einiger metallischer Elemente bzw. Verbindungen (Tab. 1) greifen verschiedene Metallverbindungen in den Stoffwechsel der Organismen ein und können zu erheblichen Beeinträchtigungen führen.

Der Beginn solcher Untersuchungen setzt die Kenntnis voraus, welche Konzentrationen in den verschiedenen Umweltkompartimenten (Boden, Luft, Wasser, Organismen) vorliegen, also wird eine solide chemische Analytik<sup>1)</sup>

benötigt. Damit kann gezeigt werden, dass bestimmte Verbindungen wie Tributylzinn (TBT) in der Nahrungskette akkumulieren (Abb. 3). Die Biologie liefert ihrerseits Hinweise auf bereits beobachtbare Effekte im Freiland. So führt TBT entlang der großen Schifffahrtswege und in Hafengebieten zum Rückgang und Aussterben verschiedener Meeresschneckenpopulationen [3]. Nun kann die Molekulare Umwelttoxikologie daran gehen, den Wirkungsmechanismus auf Organ- und/oder Zellebene aufzuklären, um mögliche irreversible Schädigungen zu entlarven und notwendigen gesetzlichen Regelungen zur eingeschränkten Verwendung der Substanz eine wissenschaftliche Grundlage zu geben.

<sup>1)</sup> unterstrichen sind die an den Projekten jeweils beteiligten Disziplinen

Metall	Mensch <sup>1</sup>	Tier <sup>1</sup>	Einordnung <sup>2</sup>
Arsen (As)	S	L	Gruppe 1
Cadmium (Cd) und seine Verbindungen	S	S	Gruppe 1
Chrom (Cr-VI) Verbindungen	S	S <sup>3</sup>	Gruppe 1
Kobalt (Co) und seine Verbindungen	I	S <sup>4</sup>	Gruppe 2B
Blei (Pb)	I	S <sup>5</sup>	Gruppe 2B
Nickel (Ni) und seine Verbindungen	S	S <sup>6</sup>	Gruppe 1

- 1: S = ausreichende Beweise vorhanden; L = schwache Befunde; I = nicht ausreichende Befunde.  
2: Gruppe 1 = karzinogen bei Menschen; Gruppe 2B = möglicherweise karzinogen bei Menschen.  
3: Calciumchromat, Bleichromat, Strontiumchromat, Zinkchromat.  
4: Metallpulver, Co(II)oxid.  
5: Anorganische Bleiverbindungen.  
6: Nickelmonoxid, kristallines Nickelsulfid, Nickelhydroxide.

Tab. 1: Metalle, deren karzinogene Wirkung von der IARC (International Agency for Research on Cancer) klassifiziert wurde [2].

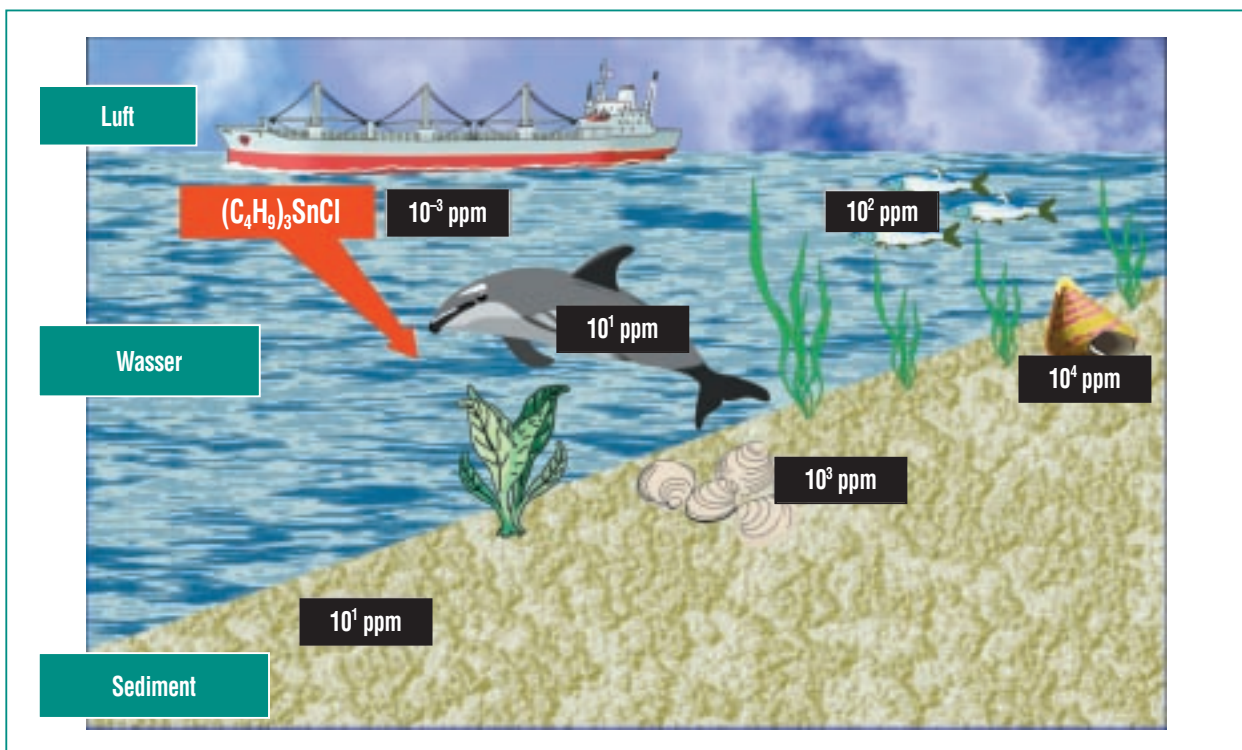


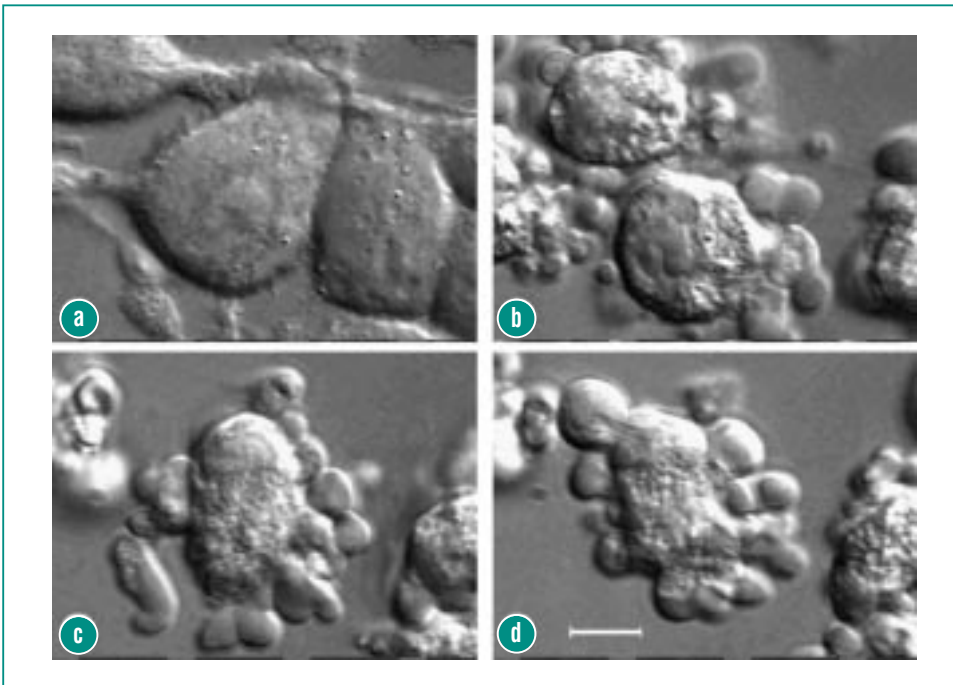
Abb. 3: Anreicherung von Tributylzinn ((C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>3</sub>SnCl) in der Nahrungskette. Vom Wasser (ca. 10<sup>-3</sup> ppm) bis hin zu den Mollusken (10<sup>4</sup> ppm) findet eine Anreicherung um mehr als millionenfach statt [Zahlen aus 6 und 7].

### Thema 3: Fluoreszenzverfahren in der Molekularen Umwelttoxikologie

Für die Untersuchung cytotoxischer Effekte von Umweltgiften werden heute Gewebekulturen von unterschiedlichsten tierischen oder menschlichen Zellen verwendet, in denen mit Hilfe von fluoreszenz-mikroskopischen Methoden die toxischen Einwirkungen direkt sichtbar gemacht werden können. Die Fluoreszenzmikroskopie mit ihren heute weitreichenden Möglichkeiten für Strukturuntersuchungen und biochemische Analysen in zeitlicher und räumlicher Auflösung kann nicht nur zur Veranschaulichung biologisch-toxikologischer Prozesse beitragen, sondern auch zu ihrer Aufklärung und sogar zum quantitativen Nachweis – direkt am Reaktionsort – einen wichtigen Beitrag leisten. Hypothesen zu molekularen Mechanismen in der Zelle, die aufgrund von biochemischen Bestimmungen im Lysat\* der untersuchten Zellen entwickelt wurden, können durch Visualisierung der Vorgänge in den Zellorganellen bestätigt oder verworfen werden.

Mit Hilfe der Gentechnik lassen sich neue fluoreszierende Proteine herstellen und in lebende Zellen einschleusen. Diese, unter der Bezeichnung „grün fluoreszierendes Protein“ (GFP) bekannt gewordenen Fluorochrome, wurden ursprünglich aus der pazifischen Qualle *Aequoria victoria* isoliert. Durch geeignete Vektoren\*, z.B. ringförmige DNA-Plasmide\*, die das GFP-Molekül

\*) Diese Begriffe sind im Glossar erläutert



**Abb. 4: Zeitlicher Verlauf der Apoptose in einer einzelnen RBL-Zelle. Die basophilen Leukämiezellen der Ratte (RBL) wurden mit 5  $\mu\text{M}$  TBT behandelt und die zeitlichen Veränderungen der Morphologie im Mikroskop mit Differential-Interferenz-Kontrast (DIC) verfolgt. Für den Originalfilm wurde alle 5 sec ein Bild aufgenommen. Die gezeigten Ausschnitte beginnen nach 60 min Vorbehandlung mit TBT: (a) 0. Minute; (b) 13. Minute; (c) 29. Minute; (d) 37. Minute (Objektiv 63fach, Ölimmersion, Maßstab 10  $\mu\text{m}$ ).**

So konnten u.a. auch wir dazu beitragen, dass die organischen, trialkylierten Verbindungen von Blei und Zinn als Auslöser des regulierten Zelltodes (Apoptose) erkannt wurden (Abb. 4) und wie sie dies auf molekularer Ebene anstellen [4, 5].

### Thema 2: Synthetische Phospholipide als Antitumormittel: ein neues Konzept

Unter diesem Titel haben wir im vergangenen Jahr an gleicher Stelle über ein „Nebenprodukt“ unserer Apoptose-Forschung berichtet [8]. In Zusammenarbeit mit Chemikern und Medizinern der Tu-

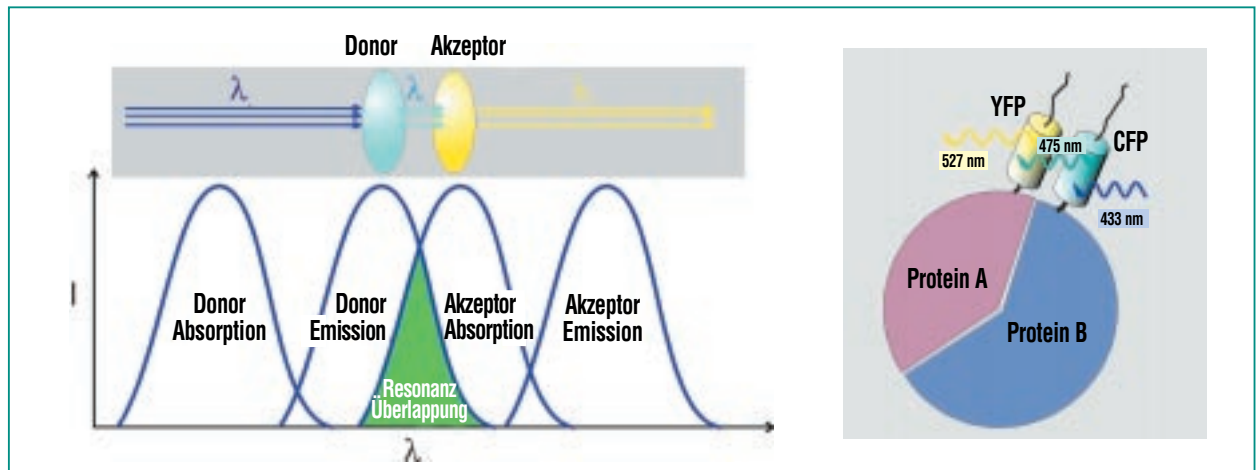
mobiologie in Freiburg wurde eine Gruppe neu synthetisierter Lipide (Fette) untersucht, die einen hemmenden Effekt auf das Wachstum von Tumorzellen ausüben. Die Molekulare Umwelttoxikologie übernahm die Aufgabe, den genauen molekularen Mechanismus ihrer Wachstumshemmung aufzuklären. Aus dieser Kooperation, die immer noch andauert, resultierten Ergebnisse, die auf zwei internationalen Tagungen mit Preisen ausgezeichnet wurden [9, 10]. Die Erkenntnisse aus unseren Arbeiten [11] sollen zu einer Optimierung der Substanzen führen, so dass diese in absehbarer Zeit einmal als Anti-Tumormittel eingesetzt werden können.

und ein zelleigenes Protein codieren, werden sogenannte Fusionsproteine, das sind zelleigene Proteine mit einem „GFP-Anhängsel“, von der Zelle selbst gebildet. Diese Fusionsproteine stellen dann hervorragende Sonden zum Aufspüren und zum Verfolgen von biochemischen Vorgängen in Zellgeweben dar. Die spektroskopischen Eigenschaften des GFP konnten durch Mutationen zusätzlich verändert werden, so dass für diese Untersuchungen eine Reihe verschiedenfarbiger GFP-Fluorochrome zur Verfügung stehen: blau (BFP), cyan (CFP), gelb (YFP) und ein verwandtes rotes (ds-Red), das aus der Seeanemone *Discosoma sp.* isoliert wurde.

Hierdurch haben sich die Einsatzmöglichkeiten in der biologisch-toxikologischen Forschung nochmals erheblich erweitert. Neben der Möglichkeit zwei verschiedene Zielstrukturen mit unterschiedlichen Farben zu versehen (Doppelmarkierung) gibt es darüber hinaus noch die Möglichkeit für den Nachweis spezifischer Protein-Protein-Interaktionen in der lebenden Zelle. Bei der Fluoreszenz-Resonanz-Energie-Transfer-Methode (FRET) wird bei einer Anlagerung z.B. eines cyanen Proteins an ein gelbes bei Anregung mit blauem Licht eine gelbe Fluoreszenz beobachtbar, die dadurch entsteht, dass das gelbe Protein durch das cyan-farbene Licht des benachbarten Proteins angeregt wird (Abb. 5). Diese und eine große Anzahl weiterer fluoreszenz-mikroskopischer Methoden sind in jüngster Zeit durch das fruchtbare Zusammenwirken von physikalischem, chemi-

## Glossar

<b>Apoptose</b>	Ein genetisch festgelegter Plan für den „programmierten, regulierten Zelltod“. Die Zellen sterben ab, ohne dass ein Entzündungsherd gebildet wird. Durch Anschalten dieses „Selbstmordprogrammes“ können überschüssige, entartete oder geschädigte Zellen auf unproblematische Art vom Organismus eliminiert werden.
<b>Blebbing</b>	Aus dem englischen entnommener Begriff der „Blasenbildung“ auf der Zelloberfläche.
<b>DNA-Plasmid</b>	Kleines ringförmiges DNA-Molekül, das oft als Vektor* für die Klonierung* von DNA verwendet wird.
<b>Enzym</b>	Protein, das chemische Prozesse in der Zelle katalysiert.
<b>Fluoreszenz</b>	Die Eigenschaft eines Stoffes, Licht von hoher Energie zu absorbieren und Licht mit einer niedrigeren Energie abzustrahlen.
<b>Klonierung</b>	Bildung von Zell- oder Organismenpopulationen durch wiederholte (asexuelle) Teilung. Bei der Klonierung von Genen wird eine große Anzahl von Kopien eines Gens hergestellt.
<b>Lysat</b>	Inhalt von Zellen, der nach Zerreißen der Zellmembran frei wird.
<b>Meta-Analyse</b>	Wird teilweise mit dem Begriff „systematische Übersicht“ synonym verwendet. Streng genommen versteht man unter einer Meta-Analyse eine Methode, mit der die Resultate mehrerer Studien zu einer bestimmten Fragestellung gesammelt, beurteilt und in einem komplizierten statistischen Verfahren miteinander verglichen werden.
<b>Modalwert</b>	Derjenige Wert einer Verteilung, welcher am häufigsten besetzt ist.
<b>Nekrose</b>	Zell- oder Gewebetod durch direkte schädigende Einwirkungen. Durch die Nekrose wird meist eine Entzündung hervorgerufen, da der Zellinhalt unkontrolliert in die Umgebung abgegeben wird.
<b>Systemische Wirkung</b>	eine Wirkung, die sich im Körper entfaltet, also erst am gewünschten Ort bzw. Organ
<b>Toxin</b>	Im allgemeinen ein giftiger Stoff
<b>Transformation</b>	Eine Veränderung der Erbinformation einer Zelle durch Einbau von „Fremd-DNA“, die häufig zur Veränderung ihrer Eigenschaften führt.
<b>Vektoren</b>	In der Zellbiologie verwendetes Element (Virus oder Plasmid), um genetisches Material in eine Zelle oder einen Organismus einzubringen.
<b>Wirkmechanismus</b>	Eines der Ziele medizinischer Grundlagenforschung ist die Aufklärung der Mechanismen von therapeutisch bedeutsamen Substanzen. Dabei sind Fragen zu beantworten, welcher Art die Wirkung ist und auf welchem Wege sie zustande kommt. Im einzelnen muss geprüft werden, an welchem Punkt der Zelle die Substanz angreift, welche Signale dadurch ausgelöst werden und was dadurch letztendlich innerhalb der Zelle für Veränderungen stattfinden.
<b>Zelllinien</b>	Zellkulturen, die sich nahezu unbegrenzt permanent züchten lassen, da sich ihre Eigenschaften meist durch Transformation* soweit geändert haben, daß sie nicht mehr absterben.



**Abb. 5: Schematisches Prinzip der Fluoreszenz-Resonanz-Energie-Transfer Mikroskopie (FRET).** Messung von Protein-Protein-Interaktionen mit Hilfe von FRET, bei Markierung von Proteinen mit einem geeignetem Paar verschiedener GFP-Varianten (z.B. CFP/YFP) wird bei engem Kontakt unter Blaulicht-Anregung nur gelbes Licht emittiert.

schem, biologischem und ingenieurwissenschaftlichem Know-how entstanden. In Tab. 2 sind als Beispiel einmal alle sogenannten „F-Techniken“ zusammengestellt, die in diesem Zusammenhang heute von Bedeutung sind.

<b>FSPIM</b>	Fluorescence <b>s</b> pectral imaging microscopy
<b>FRET</b>	Fluorescence resonance energy transfer
<b>FLIM</b>	Fluorescent life time imaging microscopy
<b>SFLIM</b>	Spectrally resolved fluorescent life time imaging microscopy
<b>FRAP</b>	Fluorescence recovery after photo-bleaching
<b>FLIP</b>	Fluorescence loss of intensity after photo-bleaching
<b>FCS</b>	Fluorescence correlation spectroscopy

**Tab. 2: Zusammenstellung einer Auswahl von sog. „F-Techniken“, die in jüngster Zeit für die Fluoreszenz-Mikroskopie entwickelt wurden.**

### *Gelb-markiertes Aktin als Sonde für das Cytoskelett*

Bei der Untersuchung toxischer Wirkungen von Organometallen, werden von uns solche Methoden eingesetzt. Eine der wirksamsten Verbindungen dieser Art, das TBT (Tributylzinn, vgl. Thema 1), wird noch immer in sogenannten „Anti-fouling“ Anstrichen bei Schiffen und in Antiseptika verwendet, aber es wurde in jüngster Zeit bei uns auch in Textilien nachgewiesen, wo es vermutlich als Verunreinigung der als Konservierungsstoffe verwendeten dialkylierten Zinnverbindungen enthalten war. TBT löst in Kulturen von menschlichen Zellen und auch in Zellen von Säugern Apoptosen aus, wenn die Konzentration im Medium im Bereich zwischen 0,2 und 5,0  $\mu\text{M}$  ( $\cong$  0,07 bis 1,8  $\text{mg/l}$   $\leq$  1 ppm) liegt.

Für die Untersuchungen verwenden wir beispielsweise Epithel- oder Bindegewebszellen, die mit GFP-Vektoren transfiziert wur-

den. Diese Vektoren enthalten ein Fusionsprotein des Aktins, das bei Anregung gelb fluoresziert und sich somit gut zur Darstellung des Cytoskeletts eignet. Die Zellen werden auf Deckgläsern angezüchtet und mit einem Fluoreszenz-Mikroskop in einer klimatisierten Kammer für mehrere Stunden beobachtet. Mit einer Video-Kamera können nun Zeitraffer-Aufnahmen von lebenden Zellen aufgenommen werden.

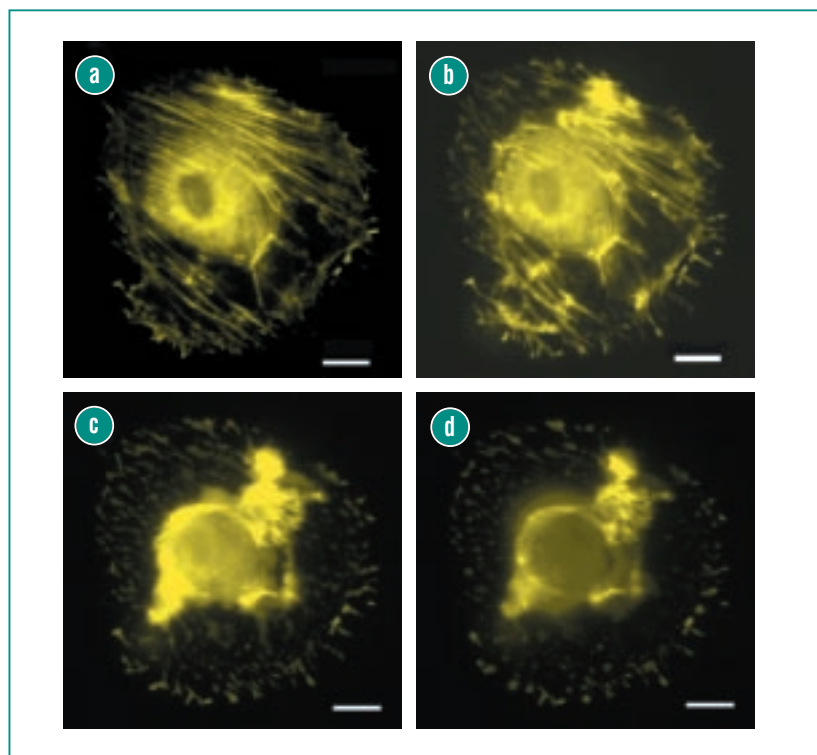
Eine der ersten beobachtbaren Veränderungen während des streng regulierten Absterbens (Apoptose) stellt neben der Abrundung und einem Schrumpfen der Zellen eine markante Umorganisation des Aktin-Cytoskeletts dar. Aktin-begrenzte Ausstülpungen der Zelle werden schon Minuten nach der Applikation von TBT zurückgezogen. Stressfasern, die besonders charakteristisch für epitheliale und Bindegewebszellen sind, lösen sich anschließend von ihren extrazellulären Anheftungspunkten, so

dass sich die meist unter Spannung stehenden Fasern in sich zusammenziehen (Abb. 6a und b, weitere Bilder und Filmbeispiele: <http://itgmv1.fzk.de/www/toxikologie/index.htm>). Je nach Anzahl und Anordnung der Fasern können sie sich so zu ringförmigen Strukturen um den Zellkern herum konzentrieren (Abb. 6c). Schließlich zerfallen die Aktin-Strukturen (Abb. 6d) bis schließlich die gesamte Zellsubstanz einschließlich Aktin in den apoptotischen Körpern „verpackt“ ist (siehe auch Abb. 4). In vivo, d.h. im lebenden Organismus, können diese dann von umliegenden Zellen des Gewebes oder von Makrophagen aufgenommen werden, ohne dass der Inhalt der abgestorbenen Zelle freigesetzt wird und dadurch Entzündungsprozesse auslöst.

#### Thema 4: Inhalationstoxikologie der Nanoteilchen

„Tod vom Allerfeinsten“ lautete kürzlich eine Schlagzeile in der „Zeit“ vom 30.08.2001 [12]. Winzige Staubpartikel sollen dafür verantwortlich sein, dass Menschen ernsthaft erkranken oder sogar sterben. Was steckt dahinter?

Staub gehört neben  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{CO}$  und Ozon zu den klassischen Luftschadstoffen. Durch effektive Minderungsmaßnahmen ist heute die Staubkonzentration in der Umwelt auf sehr niedrige Werte zurückgegangen. Studien im Raum Erfurt seit 1991/92 [13, 14] sowie in anderen Regionen der Welt [15] zeigen, dass zwar die Massenkonzentration des Staubes reduziert wurde, die Anzahl-



**Abb. 6:** Veränderungen des Cytoskeletts einer Epithel-Zelle während der Apoptose. Innerhalb von ca. 20 min wird das markante Netz von Stressfasern umorganisiert. Das zelleigene Aktin wurde durch YFP sichtbar gemacht: a) 20 Minuten nach Zugabe von TBT ( $2 \mu\text{M}$  TBT) ins Kulturmedium setzt das Zusammenziehen der Stressfasern ein; (b) nach 25 min ist der Abbau der Fasern weit fortgeschritten; c) das Aktin ordnet sich um den Zellkern herum an (36 min); d) die gesamte Zellsubstanz einschließlich des weitgehend abgebauten Aktins (41 min) wird schließlich in den apoptotischen Körpern „verpackt“ (siehe auch Abb. 4), Objektiv 40fach, Ölimmersion, Maßstab  $10 \mu\text{m}$ .

konzentration jedoch nicht. Dies ist auf den zahlenmäßig hohen Anteil an feinen ( $< 1 \mu\text{m}$ ) und ultrafeinen Partikeln (UFP,  $< 100 \text{ nm}$ ) zurückzuführen, die nur geringfügig zur Massenkonzentration beitragen. In epidemiologischen Untersuchungen wird statistisch eine Assoziation zwischen Staubkonzentration, gemessen als  $\text{PM}_{10}$  (Particulate Matter  $< 10 \mu\text{m}$ ), und Wirkungen auf die menschliche Gesundheit beobachtet. Bereits bei geringem

Anstieg der Staubkonzentrationen erhöht sich die Anzahl der Erkrankungen der Atemwege bzw. des Herz-Kreislauf-Systems sowie die Mortalität aufgrund dieser Erkrankungen. Diese akuten Effekte treten jedoch kaum bei gesunden, sondern insbesondere bei bereits erkrankten, sehr jungen und älteren Menschen auf. Eine Meta-Analyse\* zeigt, dass ein Anstieg der  $\text{PM}_{10}$ -Konzentration um  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  mit einem Anstieg der Mortalität um ca. 1% assoziiert ist.

Erkrankungen des Respirationstraktes und des Herz-Kreislaufsystems werden meistens durch mehr als einen Faktor ausgelöst. Zur Lösung der komplexen Fragestellungen zum Zusammenhang zwischen den Umweltschadstoffen und diesen Erkrankungen werden Kenntnisse aus den verschiedensten Fachbereichen benötigt: Physik und Ingenieurwissenschaften, um die Emissionen zu messen und die Partikel zu charakterisieren, Chemie, um die chemische Zusammensetzung unbekannter Partikel zu analysieren, Meteorologie, um den Transport von der Emissionsquelle bis zum Wirkort zu berechnen, Toxikologie und Molekularbiologie, um die biologischen Wirkungen von Partikeln mit Hilfe von *in vitro* und *in vivo* Methoden zu untersuchen, Epidemiologie und Medizin, um die Korrelationen zwischen Luftschadstoffen und Gesundheitseffekten in der Bevölkerung und am Arbeitsplatz zu ermitteln und wiederum Physik und Ingenieurwissenschaft, um nach Identifizierung der toxischen Komponenten Minderungsstrategien zu entwickeln. Die genannten Arbeitsgebiete werden im Programm „Gesundheit – Umweltbedingte Störungen der Gesundheit“ zusammengefasst (Abb. 7).

Partikel-durchmesser (µm)	Partikel-anzahl (n/cm³)	Partikel-oberfläche (µm²/cm³)
0,02	2.400.000	3.016
0,5	153	120
2,5	1	24

Tab. 3: Anzahl und Oberfläche von monodispersen Partikeln gleicher Dichte bei einer Konzentration von 10 µg/m³ [17].

Von der Partikelgröße hängt ab, welche Teilchen eingeatmet werden und wo die Ablagerung im Atemtrakt erfolgt. Aus den hierfür vorliegenden experimentellen Daten (Abb. 8) wurden für die wirkungsbezogene Messung von

Staub Konventionen in der DIN ISO 7708 [16] festgelegt. Die gesamte einatembare Fraktion wird durch PM<sub>10</sub> und die bis in die Alveolen vordringende Fraktion durch PM<sub>2,5</sub> (Particulate Matter < 2,5 µm) annäherungsweise er-

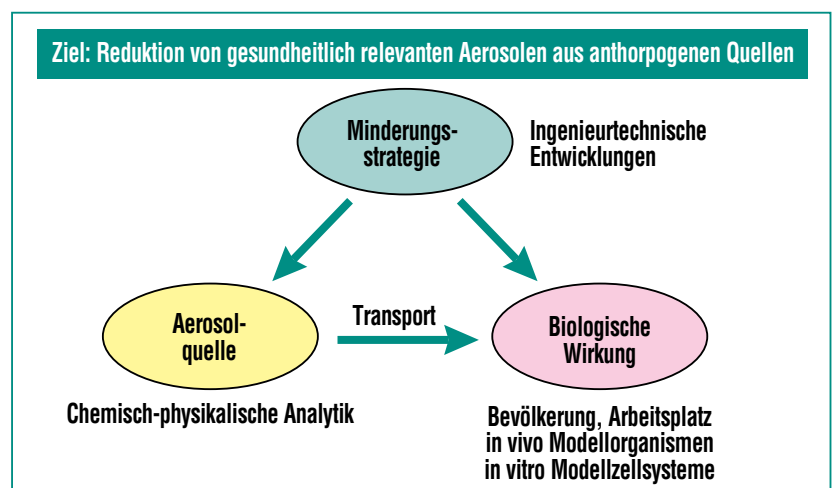


Abb. 7: Arbeitskonzept des „Aerosolprojekts“, das zusammen mit dem GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit und anderen Einrichtungen der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren (HGF) erarbeitet wurde. Die offenen Fragen zu den gesundheitsrelevanten Aerosolen können nur durch interdisziplinäre Zusammenarbeit beantwortet werden.

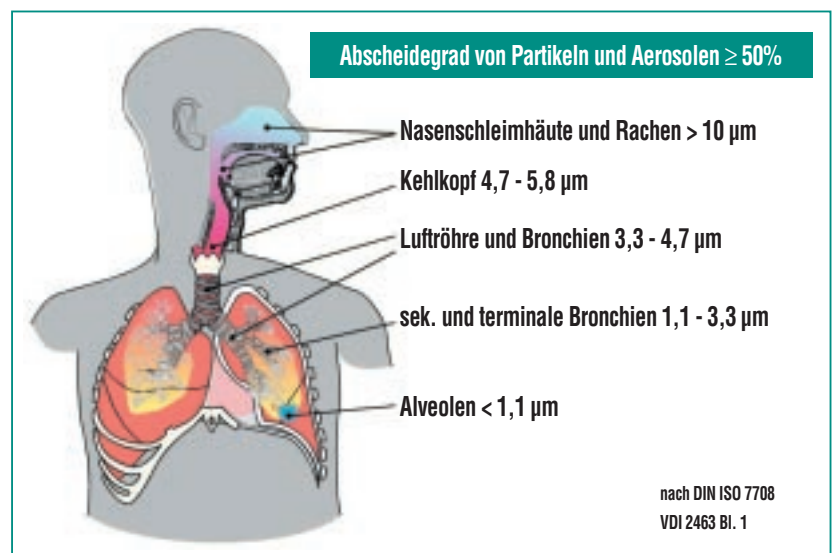


Abb. 8: Mittlere Wahrscheinlichkeit für Schwebstaub, in bestimmte Bereiche des Atemtraktes vordringen zu können (Abscheidegrad, nach DIN ISO 7708).



fasst. In der Europäischen Union gilt gegenwärtig eine Richtlinie für die Luftqualität für  $PM_{10}$  von  $50 \text{ mg/m}^3$  (Jahresmittelwert). Die amerikanische Umweltbehörde Environmental Protection Agency (EPA) hat kürzlich auch einen neuen Richtwert für  $PM_{2,5}$  mit  $25 \text{ mg/m}^3$  eingeführt.

Dass ultrafeine Partikel nur sehr wenig zur Massenkonzentration, jedoch enorm viel zur Anzahlkonzentration und zur Partikeloberfläche beitragen, zeigt die folgende Beispielrechnung (Tab. 3). Es genügt ein Partikel/ $\text{cm}^3$  mit einem Durchmesser von  $2,5 \text{ }\mu\text{m}$  für eine Massenkonzentration von  $10 \text{ }\mu\text{g/cm}^3$ . Bei Partikeln der Größe  $20 \text{ nm}$  benötigt man mehr als  $2 \text{ Mio. Partikel/cm}^3$ , um die gleiche Massenkonzentration zu erhalten.

Die Größenverhältnisse werden durch einen direkten Vergleich von ultrafeinen Partikeln und zellulären Strukturen deutlich (Abb. 9).

Die anthropogen verursachten Komponenten der Umweltaerosole stammen vor allem aus industriellen Verbrennungsprozessen sowie aus Verbrennungen in Haushalten und aus dem Straßenverkehr [18]. Sie enthalten neben 30-50% Ruß auch Metalle, Säuren, organische Stoffe oder biogene Materialien. Für industrielle Anwendungen und für medizinische Zwecke werden in zunehmenden Maße Nanopartikel produziert, die u.U. Auswirkungen auf die Arbeitsplatzsicherheit haben.

Bisher ist nicht bekannt, welche Partikeleigenschaften für die Gesundheitseffekte von Bedeutung sind. Außerdem gibt es zum Mechanismus der Aufnahme von UFP in Zellen und ihren biologischen Wirkungen noch keine Klarheit. In der Toxikologie des ITG soll daher am Beispiel eines umweltrelevanten Aerosols mit lungenspezifischen *in vitro* Tests herausgefunden werden, welche chemischen Bestandteile und

welche Partikelgrößenfraktionen zur toxischen Wirkung beitragen. Als Beispiel für Umweltpartikel wurde Flugstaub aus einer industriellen Hausmüllverbrennungsanlage ausgewählt, weil der Verbrennungsprozess, ähnlich wie bei der Kohleverbrennung, gut untersucht ist und weil dieses Thema eines der Arbeitsschwerpunkte des Forschungszentrums darstellt [19]. Die zu untersuchende Flugasche besteht zu 70% aus wasserlöslichen Sulfaten und Chloriden von Na, K und Ca, sowie aus verschiedenen Metallen. Der Modalwert\* der Partikelgröße liegt bei  $200 \text{ nm}$ , es ist jedoch auch eine ultrafeine Fraktion mit nur 3% Massenanteil und 31% Anteil an der Partikelanzahl enthalten (Abb. 10). Die Partikel sollen einerseits als Suspension im Kulturmedium und andererseits als Aerosol an Zielzellen aus der Lunge appliziert werden und die biologischen Wirkungen werden mit denen von inerten Kontrollpartikeln verglichen. Beide Vorgehensweisen haben Vor- und

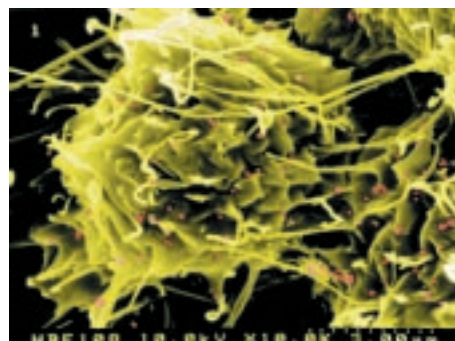
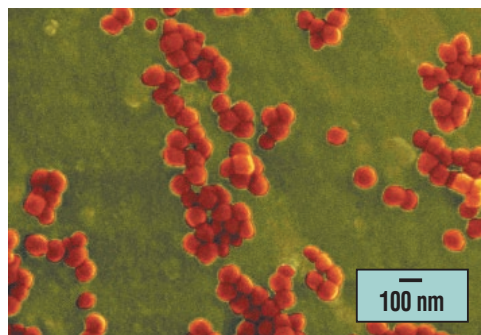


Abb. 9: Darstellung von Partikeln im Raster-Elektronenmikroskop (REM). Links: REM-Aufnahme (B. Neufang, HVT-HZ) von ultrafeinen Hämatitpartikeln ( $Fe_2O_3$ , mittlerer Durchmesser  $70 \text{ nm}$ ), die von W. Ferstl (ITC-WGT) synthetisiert wurden. Rechts: REM-Aufnahme (H. Zöltzer, Uni Kassel, Humanbiologie) eines Makrophagen der Maus-Zelllinie RAW 264.7 (gelb), der Hämatitpartikel phagozytiert (rot).

Nachteile. Die Resuspension von Flugasche in Kulturmedium erlaubt rasche Analysen, die löslichen und unlöslichen Bestandteile können getrennt untersucht werden, andererseits können Fehleinschätzungen der Ergebnisse nicht völlig ausgeschlossen werden, da z.B. die Wechselwirkungen der Partikel mit Mediumbestandteilen zu veränderten Reaktionen der Zellen führen können. Die Resuspension in Luft ist technisch sehr aufwendig, die realen Verhältnisse in der Lunge können bei direktem Kontakt des Aerosols mit den Zielzellen jedoch erheblich besser simuliert werden. Dazu wird aus der Flugasche ein definiertes Aerosol hergestellt. Die Lungenzellen werden über die Gasphase exponiert [20].

Für die Exposition werden die Zellen auf Transwell®-Membranen ausgesät, die in Zellkulturschalen in das Kulturmedium eingesetzt werden. Die Poren in der Membran mit dem Durchmesser

0,4  $\mu\text{m}$  stellen sicher, dass sich die Zellen mit Flüssigkeit versorgen können. Nach der Exposition werden die Zellen auf ihre Vitalität und das Kulturmedium auf den Gehalt an freigesetzten Gewebs-hormonen untersucht, die charakteristisch für entzündliche Veränderungen sind.

Bei bisherigen Versuchen konnte gezeigt werden, dass das Verfahren zur Resuspension von Flugasche in Luft und die Exposition von Lungenzellen über die Atmosphäre prinzipiell funktionsfähig ist. Die Zellen zeigten nach der Exposition mit zunächst niedrigen Aerosolkonzentrationen und kurzen Expositionszeiten noch keine signifikanten Veränderungen im Vergleich zu den Kontrollzellen. Dagegen konnte bei der Exposition im Kulturmedium schon für niedrige Konzentrationen gezeigt werden, dass Flugaschepartikel normale Funktionen der Zellen erheblich verstärken. Übertragen auf die menschl-

iche Gesundheit ist dies ein Hinweis, dass eine Partikelexposition bei einer gleichzeitigen Lungenerkrankung, wie Bronchitis, Keuchhusten, u.a., zur Störung der Abwehrreaktionen führen können [21, 22].

Mit Hilfe der beschriebenen Untersuchungen sollen Informationen zur Verfügung gestellt werden, mit denen die Gesundheitseffekte durch partikuläre Luftverschmutzungen aus einzelnen Quellen beurteilt werden können, um dann gezielte technische Maßnahmen zur Emissionsminderung vorzunehmen. Genauso wichtig ist die Einschätzung der Partikelemissionen, die bei der Anwendung von neuen Technologien oder beim Einsatz von neuen Brennstoffen entstehen können, damit die Entwicklungen so frühzeitig wie möglich in die richtige Richtung gelenkt oder Entscheidungen über eine ausgedehntere Anwendung getroffen werden können.

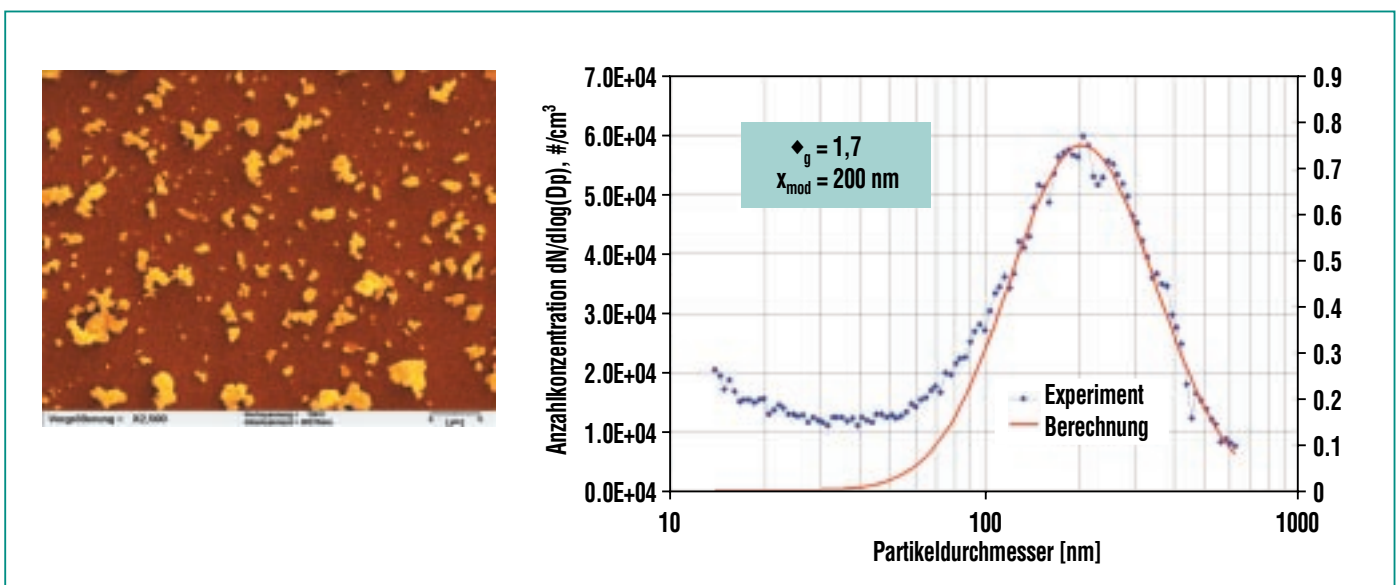


Abb. 10: Charakterisierung der Partikel aus Flugasche. Links: REM-Aufnahme der verwendeten Flugasche (M. Hauser, ITC-TAB). Rechts: Partikelgrößenverteilung der resuspendierten Flugasche (S. Mülhopt, ITC-TAB).

## Zusammenfassung und Ausblick

Die medizinischen und ökologischen Erkenntnisse der letzten 100 Jahre verdeutlichen eindringlich, dass eine technische Entwicklung die begleitende Risikobewertung der Prozesse und ihrer Einflüsse auf die Umwelt auch in der Zukunft unbedingt erfordert. Schon während der Erforschung neuer Techniken müssen mögliche Risiken ermittelt und weitestgehend ausgeschlossen werden. Dazu gehört eine starke Toxikologie, die sich von der reinen klinischen Form grundsätzlich unterscheidet. Die umweltbezogene Toxikologie muß daher

möglichst einfache Modelle entwickeln und bereitstellen, um solche Fragestellungen angehen zu können. Daraus resultieren Vorstellungen zu schädlichen Wirkungen von Chemikalien, technischen Einflüssen und Entwicklungen, die eine Risikoabschätzung ermöglichen. Diese ist dann die Grundlage für Entscheidungen, Veränderungen z. B. in Produktionsanlagen einzuführen.

## Danksagung

Für die interdisziplinäre Kooperation sind wir bisher folgenden Instituten und Institutionen dankbar: Labor für Elektronenmikroskopie des Institutes für Transura-

ne der European Commission, Joint Research Centre, Karlsruhe; Klinik für Tumorbologie in Freiburg; Institut für Pharmakologie und Toxikologie der Medizinischen Fakultät, Universität Ulm; Abteilung für Humanbiologie der Universität Kassel; Zoologisches Institut, Abt. Ökologie und Institut für Lebensmittelchemie der Universität Karlsruhe; Institut für technische Chemie, Forschungszentrum.

## Literatur

- [1] J.O. Nriagu, J.M. Pacyna, *Nature (Lond.)* 333, 134 (1988)
- [2] A. Hartwig, *Biometals* 8, 3 (1995)
- [3] J. Oehlmann, *Imposex bei Muriciden (Gastropoda, Prosobranchia) – eine ökotoxikologische Untersuchung zu TBT-Effekten*. Cuvillier Verlag, Göttingen (1994)
- [4] T. Ade, F. Zaucke, H.F. Krug, *Fresenius J. Anal. Chem.* 354, 609 (1996)
- [5] F. Zaucke, H. Zöltzer, H.F. Krug, *Fresenius J. Anal. Chem.*, 361, 386 (1998)
- [6] K. Kannan, K. Senthikumar, B.G. Loganathan, S. Takahashi, D.K. Odell, S. Tanabe, *Environm. Sci. Technol.*, 31, 296 (1997)
- [7] K. Fent, *Crit. Rev. Toxicol.*, 26, 1 (1996)
- [8] A. Matzke, H.F. Krug, U. Massing, *Nachrichten*, 32 (1/2), 105 (2000)
- [9] A. Matzke, U. Massing, H.F. Krug, *J. Tumor Marker Oncol.*, 13, 62; *15th Int. Conf. Human Tumor Markers*, June 14-17, Lugano, Schweiz (1998)
- [10] H.F. Krug, A. Matzke, U. Massing, *Chem. Phys. Lipids*, 107: 40; *41st Int. Conf. Biochem. Lipids*, Sept. 13-16, Halle (2000)
- [11] A. Matzke, U. Massing H.F. Krug, *Eur. J. Cell Biol.* 80, 1 (2001)
- [12] *Die Zeit*, 30.08.2001 „Tod vom Allerfeinsten“, [www.zeit.de](http://www.zeit.de)
- [13] H.E. Wichmann, C. Spix, T. Tuch, G. Wölke, A. Peters, J. Heinrich, W.G. Kreyling, J. Heyder, *Daily mortality and fine and ultrafine Particles in Erfurt, Germany. Part I: Role of particle number and particle mass*. Health Effects Institute, Cambridge, USA, Report 98 (2000); <http://www.healtheffects.org/Pubs/Wichmann.pdf>
- [14] H.E. Wichmann, A. Peters, *Epidemiological evidence of the effects of ultrafine particle exposure*. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 358, 2751-2769 (2000)
- [15] C.A. Pope, D.W. Dockery, *Epidemiology of particle effects*. In: *Air pollution and health (Holgate, S.T., Samet, J.M., Koren, H.S., Maynard R.L., eds.)* 673-705, Academic Press, San Diego, CA (1999)
- [16] *DIN ISO 7708: Luftbeschaffenheit – Festlegung von Partikelgrößenverteilungen für die gesundheitsbezogene Schwebstaubprobennahme* (Januar 1996)
- [17] G. Oberdörster, R.M. Gelein, J. Ferin, B. Weiss, *Association of particulate air pollution and acute mortality: Involvement of ultra-fine particles?* *Inhalation Toxicol.* 7, 111-124 (1995)
- [18] *LfU und UMEG, Schwebstaubbelastungen in Baden-Württemberg* (1998)
- [19] *Nachrichten*, 32, Heft 3 (2000)
- [20] S. Mülhopt, *Diplomarbeit am ITC-TAB* (2000)
- [21] S. Diabaté, S. Mülhopt, H.-R. Paur, H.F. Krug, *Ann. Occup. Hygiene* (2001, zur Veröffentlichung eingereicht)
- [22] geplant in: *Nachrichten*, Jahrgang 34, Heft 1 (2002)

# Impakt-Simulationen auf der Mikro- bis Nanometerskala

J. Gspann, IMT; M. Hase, Universität Stuttgart, Institut für Thermodynamik der Luft- und Raumfahrt; Y. Yamaguchi, IMT und Tokyo University, Department of Mechanical Engineering

Durch den Aufprall hochbeschleunigter Atomcluster können Oberflächen im Nanometermaßstab modifiziert werden. Die Aufprallenergie wird sehr nah an der Materialoberfläche in kinetische Energie der Bewegung des Oberflächenmaterials umgesetzt und schließlich thermalisiert. Dabei auftretender Materialverlust führt bei länger anhaltendem Bombardement mit hochenergetischen Clustern zur Erosion der Oberfläche. Durch Abdecken von Oberflächenbereichen mit Hilfe einer Schablone, oder Maske, lässt sich die Oberfläche strukturieren, mit bewegten Masken sogar dreidimensional. Es zeigt sich, dass die Erosion mit Clustern zu sehr glatten Oberflächen, mit Rauigkeiten im Bereich von einem Nanometer, führt [1].

Die entscheidenden physikalischen Vorgänge beim Aufprall eines Clusters von etwa 1000 Atomen und einer kinetischen Energie von 100 keV dauern nur wenige Pikosekunden ( $10^{-12}$  Sekunden) und lassen sich nicht direkt beobachten. Die Aufschlagsgeschwindigkeit der Cluster liegt oberhalb von 10 km/s und ist im Labor mit makroskopischen Projektilen unerreichbar. Nur der Aufschlag von Meteoriten auf die Erde vollzieht sich mit ähnlichen Geschwindigkeiten. Die Folgen von Meteoriteneinschlägen, d. h. von Megatonnen-Phänomenen im Kilometer-Maßstab, können also allein zum Vergleich mit den nanometerskaligen Folgen von Clusterimpakten herangezogen werden! Dabei zeigt sich jedoch – vielleicht überraschenderweise – dass auch beim Meteoriteneinschlag wesentliche Vorgänge

noch nicht hinreichend verstanden werden [2].

Es lohnt sich also der Versuch, die Clusterimpakte durch Simulationsrechnungen genauer zu verstehen. Im folgenden werden solche Rechnungen vorgestellt, bei denen die Bewegung jedes einzelnen der beteiligten Atome unter der Wirkung der Kräfte der es umgebenden Atome verfolgt wird. Solche Simulationen werden als molekulardynamische (MD-) Rechnungen bezeichnet und werden hier für den Überschall-Impakt von Argon- bzw. Kohlendioxid-Clustern auf Diamant wiedergegeben.

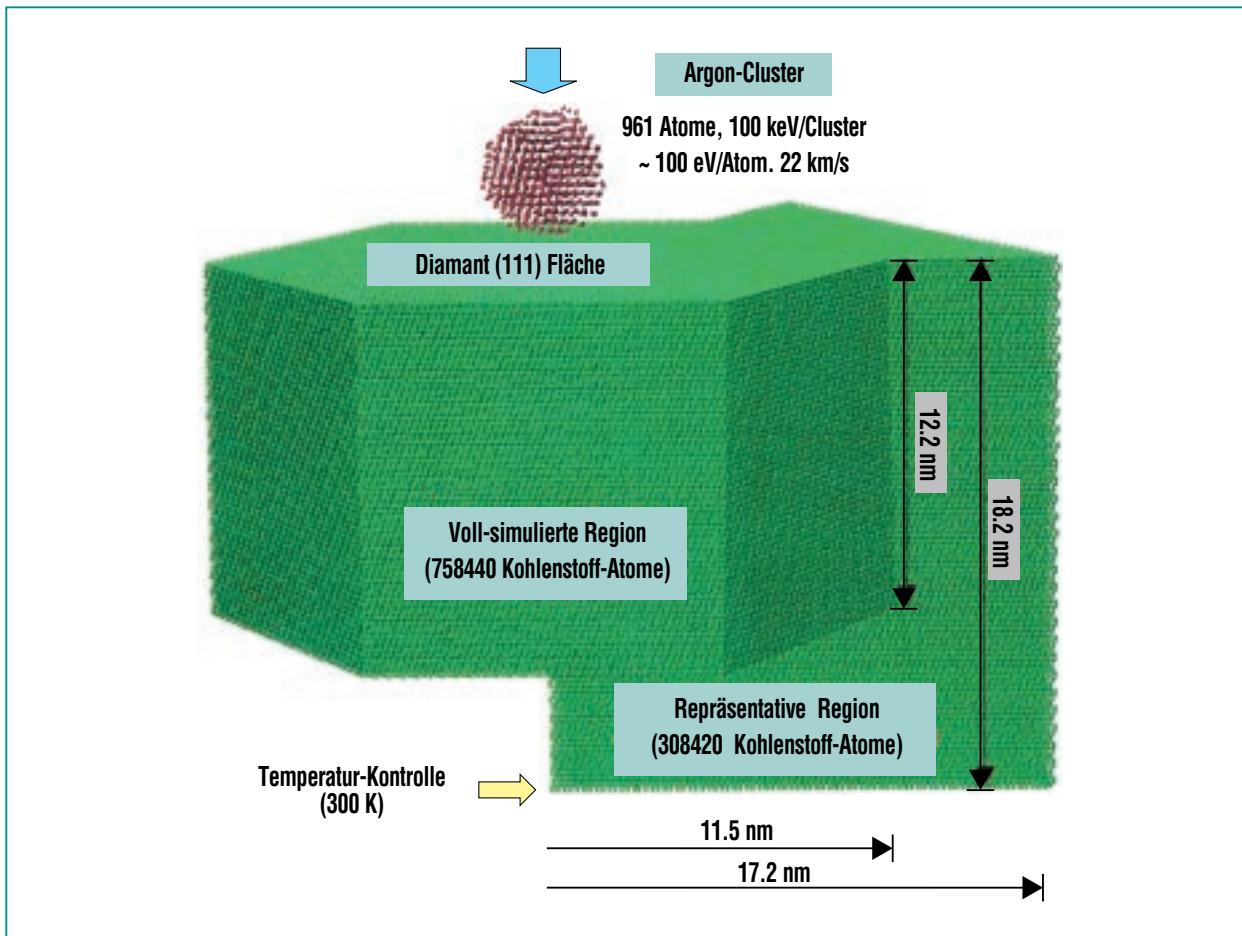
Bei größeren Projektilen mit Durchmessern von einigen Mikrometern wird die Zahl der im Projektil enthaltenen Atome um einen Faktor  $10^9$  größer und eine MD-Simulation undurchführbar. Projektilen dieser Größenordnung, wenn auch mit wesentlich geringerer Aufprallgeschwindigkeit, gewinnen zunehmend an Bedeutung, z. B. bei Tintenstrahldruckern oder Pikoliter-Dispensern [3]. Zu ihrer Behandlung müssen andere Simulationsmethoden entwickelt werden, die entweder von den kontinuumsmechanischen Navier-Stokes-Gleichungen oder von der Boltzmann-Gleichung der kinetischen Gastheorie ausgehen, aber explizit die Oberfläche des Tropfens berücksichtigen [3]. Beispiele für solche Simulationen werden im folgenden gezeigt, um auf die Verwandtschaft der Aufprallphänomene aufmerksam zu machen.

Diese etwas makroskopischeren Simulationsverfahren könnten aber auch dann nützlich sein,

wenn aufgrund quantenmechanischer Effekte die atomare Struktur der Tropfen „verwischt“ wird. Das ist bei Clustern der Heliumisotope der Fall. Impaktvorgänge auf solche Cluster lassen sich möglicherweise durch die kontinuumsmechanischen Simulationen verstehen und mit experimentellen Ergebnissen vergleichen.

## Cluster-Krater Simulation

Die molekulardynamische Simulation besteht in der Lösung der Newtonschen Bewegungsgleichungen für alle beteiligten Atome. Die Kraft zwischen je zwei Atomen ergibt sich aus der Ortsableitung des sogenannten interatomaren Wechselwirkungspotentials, das man für die Simulation kennen oder annehmen muß. Im vorliegenden Fall mit Clustern aus Argonatomen oder Kohlendioxidmolekülen und Diamant, d. h. Kohlenstoff, als Oberflächenmaterial interessieren Wechselwirkungen zwischen Kohlenstoff(C)-, Sauerstoff(O)- und Argon(Ar)-Atomen. Für die raumwinkelabhängige C-C-Wechselwirkung kann ein empirisches Potential (Brenner) [4] verwendet werden. Für die C-O- und die O-O-Wechselwirkung wird dieses Potential entsprechend den jeweiligen Bindungswinkeln und -energien angepasst. Für die Ar-Ar- und die Ar-C-Wechselwirkung werden winkelunabhängige Potentiale (Lennard-Jones) benutzt. Die genauen Potentialparameter sind an anderer Stelle nachzulesen [5].



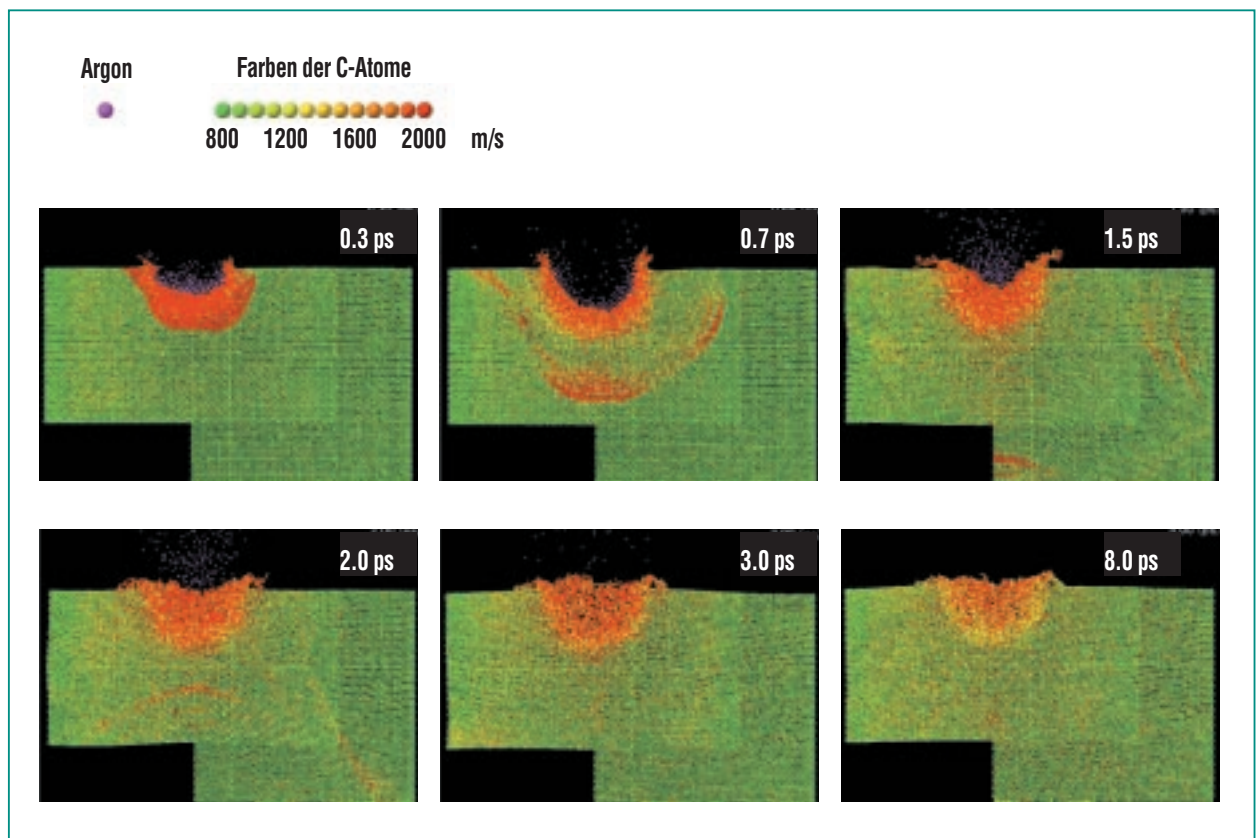
**Abb. 1:** Das simulierte System setzt sich zusammen aus dem hochbeschleunigten Cluster, hier bestehend aus 961 Argonatomen, und einem einkristallinen Diamanten, auf dessen härteste Oberfläche [(111)-Fläche] der Cluster mit einer kinetischen Energie von 100 keV aufschlägt. Die innere Säule mit sechseckigem Querschnitt geht voll in die Simulation ein, während von der umgebenden Region nur ein repräsentatives Sechstel simuliert wird.

Bei molekulardynamischen Simulationen ist stets die Behandlung der Grenzen des ausgewählten Materialbereiches problematisch, wenn das System nicht von vornherein nur eine beschränkte Zahl von Atomen, wie z. B. bei einem Molekül, umfasst. Im hier vorliegenden Fall wurde das betrachtete System möglichst groß gewählt. Die Abb. 1 zeigt das behandelte System, das aus dem hochbeschleunigten Cluster mit 961 Ar-Atomen oder 960 CO<sub>2</sub>-Mo-

lekülen und einem Ausschnitt aus einem einkristallinen Diamanten besteht, auf dessen härteste Oberfläche (eine (111)-Fläche) der Cluster aufschlägt. Der Diamant ist unterteilt in eine innere Säule mit sechseckigem Querschnitt und eine äußere Region, von der nur ein repräsentatives Sechstel simuliert wird. Die Bewegungsgleichungen werden mit Zeitschritten von 0,2 fs ( $10^{-15}$  s) während der ersten beiden Piko-

sekunden und danach von 0,5 fs integriert.

Abb. 2 zeigt Schnappschüsse aus der Simulation für den Impact eines Ar-Clusters mit 100 keV kinetischer Energie, das entspricht einer Aufprallgeschwindigkeit von etwa 22 km/s. Zur Verdeutlichung ist nur eine 1nm dünne Scheibe des Diamanten parallel zur Einfallrichtung des Clusters gezeigt. Es ist klar zu erkennen, dass nach etwa 0,7 ps ein etwa halbkugeliger Krater ausgebildet



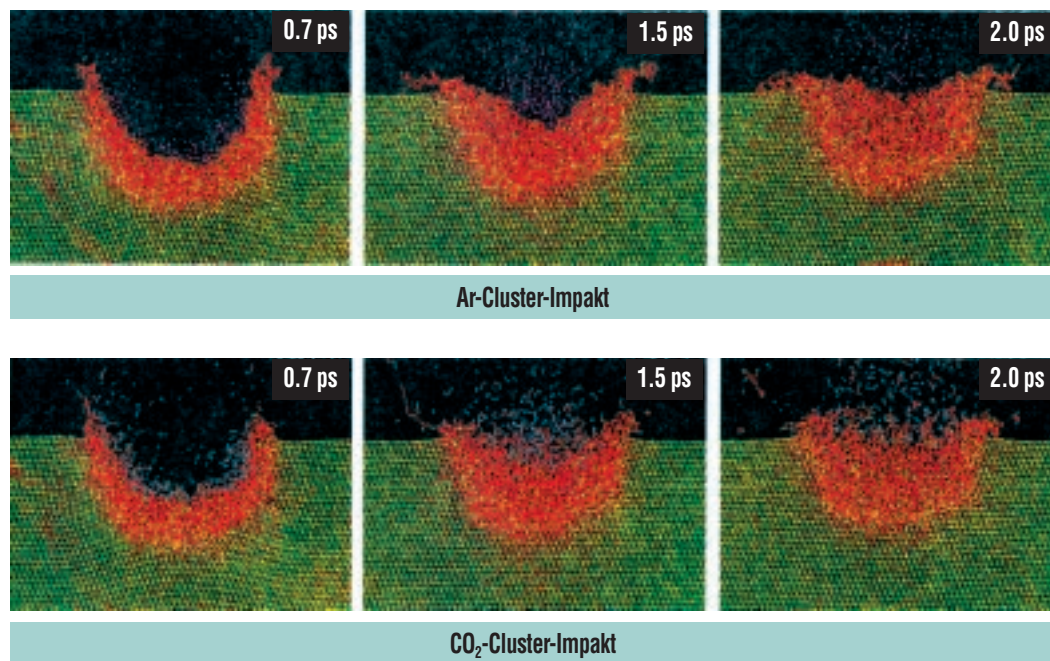
**Abb. 2: Momentaufnahmen aus der Simulation des Aufschlags eines Ar-Clusters mit 961 Atomen. Gezeigt werden Scheiben parallel zur Einfallsrichtung und 1 nm stark. Nach 0.7 ps ist ein etwa halbkugelförmiger Krater im Diamant deutlich ausgebildet und Schockwellen laufen ins Material. Nach 1.5 ps ist der Krater aber schon fast wieder aufgefüllt, obwohl die reflektierte Schockwelle die Kraterregion noch nicht wieder erreicht hat.**

ist und Schockwellen in die Tiefe des Materials laufen. Tiefrot gefärbte C-Atome haben eine Geschwindigkeit von 2 km/s oder mehr. Die Geschwindigkeit der Schockwelle lässt sich zu etwa 14-15 km/s bestimmen. Das ist etwas langsamer als die reale Schallgeschwindigkeit in Diamant von etwa 18 km/s. Der Kraterdurchmesser beträgt etwa 6 nm und ist gut im Einklang mit einer empirischen Formel, die aus makroskopischen ballistischen Experimenten abgeleitet wurde [6]. In solchen makroskopischen Experimenten bleiben die Krater al-

lerdings permanent erhalten, während der simulierte Cluster-Impakt-Krater sich rasch wieder auffüllt. Bereits nach 2 ps ist der Krater wieder fast völlig relaxiert und zwar bevor die am Boden der Simulationszelle reflektierte Schockwelle die Kraterregion wieder erreicht hat. Damit ist erstens gezeigt, dass die Kraterrelaxation nicht durch die reflektierte Schockwelle verursacht wird, und zweitens, dass das simulierte System für diese Aussage genügend groß gewählt wurde. Die Relaxation der Impaktkrater erklärt die experimen-

tell beobachtete geringe Rauigkeit der clustererodierten Oberflächen.

Für die Mikrostrukturierung von Diamant verwenden wir aber vorzugsweise CO<sub>2</sub>-Cluster, bei deren Aufprall auch eine chemische Komponente der Erosion ins Spiel kommt. Die CO<sub>2</sub>-Moleküle werden beim Aufprall dissoziiert, sodass atomarer Sauerstoff entsteht, der den Diamanten chemisch angreifen kann. Wir sprechen deswegen von „reactive accelerated cluster erosion“, abgekürzt RACE. Dabei können aus einem CO<sub>2</sub>-Molekül und einem



**Abb. 3: Die Kraterrelaxation verläuft bei Ar- und bei CO<sub>2</sub>-Cluster-Impakten fast gleich. Die Krateroberfläche ist nach einem Argon-Cluster-Impakt jedoch glatter und kompakter als nach einem CO<sub>2</sub>-Cluster-Impakt.**

C-Atom des Diamanten zwei Moleküle Kohlenmonoxid entstehen, das als flüchtiges Gas abgepumpt werden kann.

Für die molekulardynamische Simulation sind die beiden Arten von Clustern zunächst ziemlich ähnlich: das Molekulargewicht von CO<sub>2</sub> beträgt 44, das von Argon 40. In beiden Clustern werden die Konstituenten durch die relativ schwachen intermolekularen Kräfte (Van-der-Waals-Kräfte) zusammengehalten. Wie weit ähneln sich dann auch die Aufprallprozesse von Argon- und Kohlendioxid-Clustern?

Abb. 3 zeigt einen Vergleich entsprechender Simulationsrechnungen. Zunächst scheint die Kraterbildung fast identisch. Bei

näherem Hinsehen erkennt man aber, dass die Oberflächenzone des relaxierten Kraters nach einem Ar-Cluster-Einschlag kompakter und glatter ist als nach einem CO<sub>2</sub>-Cluster-Einschlag. Besonders die Momentaufnahme nach 2 ps zeigt im CO<sub>2</sub>-Fall eine Struktur mit vertikalen Fasern. Die experimentell beobachtete höhere Rauigkeit der CO<sub>2</sub>-clustererodierten Oberflächen [7] deutet sich also bereits beim einzelnen Impact in der Simulation an.

Wenn man in den Simulationsbildern die Kohlenstoffatome unsichtbar macht, erhält man die linken Spalten der Abb. 4. Dabei wird deutlich, dass die Sauerstoffatome sich wesentlich länger in der Oberflächenzone des Dia-

mant aufhalten als die Argon- atome. Bei den beiden Abbildungen, 3 und 4, muss man natürlich beachten, dass die gezeigten Situationen nur Zwischenstadien darstellen.

In Abb. 5 ist als Funktion der Zeit dargestellt, wie viele Kohlenstoffatome die Aufschlagregion verlassen. Danach ist beim Argon-Cluster-Impakt die Erosionswirkung bereits nach 2 ps abgeschlossen. Die Kohlenstoffatome werden vorzugsweise am Krater- rand herausgeschleudert, solange diese Zone noch stark komprimiert ist. Später wirken die Argon- atome sogar reflektierend auf die verdampfenden C-Atome. Beim CO<sub>2</sub>-Cluster-Impakt ist der Kohlenstoffabtrag dagegen erst

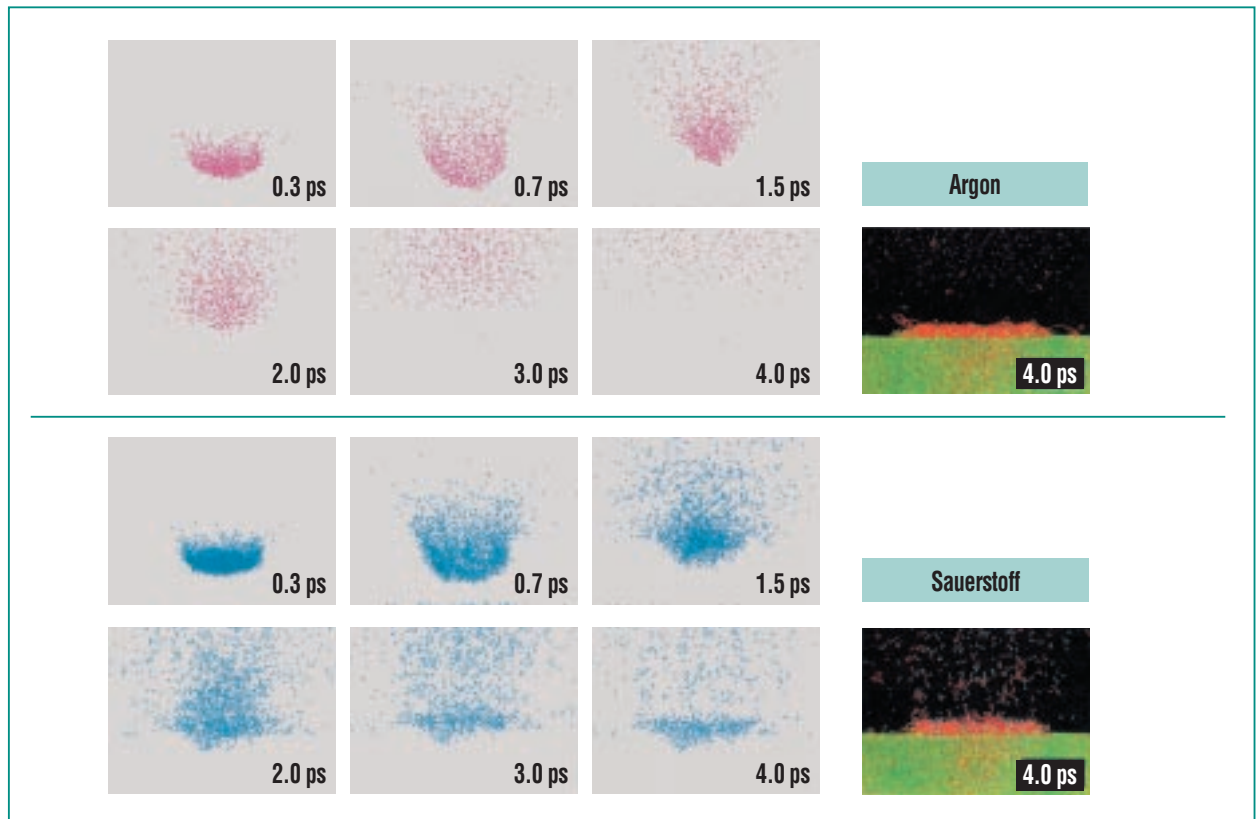
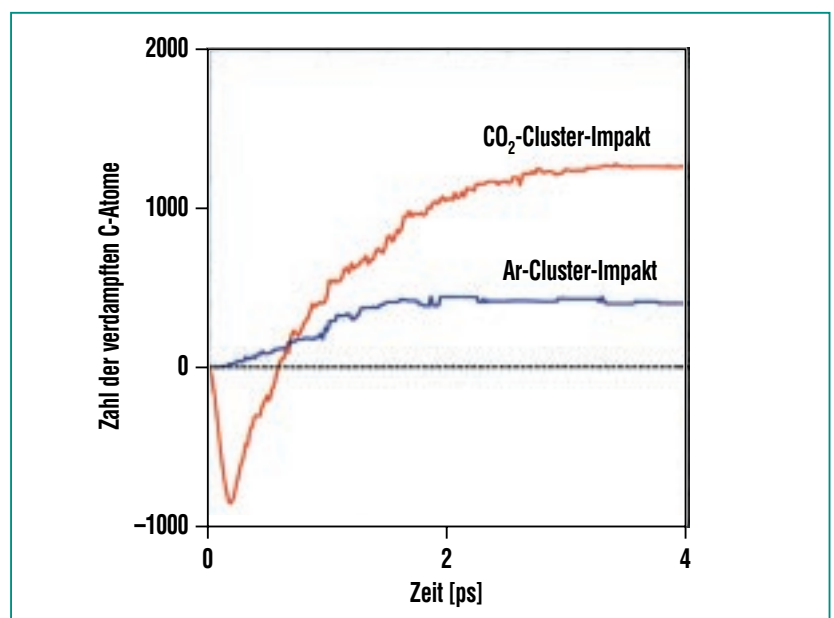


Abb. 4: Vergleich der Kraterrelaxation bei Ar-Cluster-Impakten (oben) und bei  $\text{CO}_2$ -Cluster-Impakten (unten), in den drei linken Spalten mit unsichtbar gemachten Kohlenstoffatomen. Die aus dem  $\text{CO}_2$ -Cluster stammenden Sauerstoffatome bleiben deutlich länger an der Diamantoberfläche als die Atome des Argonclusters, die keine chemische Bindung mit den C-Atomen eingehen.

Abb. 5: Vergleich der Zahl der verdampften Kohlenstoffatome bei Ar- und bei  $\text{CO}_2$ -Cluster-Impakten als Funktion der Zeit nach dem Aufprall. Beim Ar-Cluster-Impakt wird nur im Verlauf der ersten 2 ps Kohlenstoff (am Kraterrand) ausgestoßen, während beim  $\text{CO}_2$ -Cluster-Impakt die wesentliche Verdampfung erst nach etwa 4 ps auf dreifach höherem Niveau abgeschlossen ist. (Die negative C-Verdampfung bei etwa 0.2 ps wird durch die C-Atome des einfallenden  $\text{CO}_2$ -Clusters verursacht.)





nach etwa 4 ps praktisch abgeschlossen und erreicht ein etwa dreifach höheres Niveau. Auch das entspricht den experimentellen Ergebnissen, wonach eine um einen Faktor 4 höhere Erosionsrate mit CO<sub>2</sub>-Clustern erzielt wird. Die negative Abtragsrate bei 0.2 ps wird durch die einfallenden C-Atome des Clusters hervorgerufen.

Zusammenfassend kann man also feststellen, dass die molekulardynamischen Simulationen bereits für den isolierten Impact die charakteristischen Unterschiede

der rein physikalischen und der reaktiven Erosion widerspiegeln.

Abb. 6 zeigt schließlich die Temperaturverteilung im Impactbereich für verschiedene Zeiten. Temperatur bezeichnet hier die lokale kinetische Energie der Atome. Danach ist die zentrale Temperatur nach 8 ps erst auf etwa 4000 K abgefallen. Wenigstens bis zu dieser Zeit ist das Material im Impactzentrum als flüssig anzusehen. Es wäre natürlich sehr interessant zu untersuchen, in welcher festen Phase der Kohlenstoff schließlich erstarrt. Dazu be-

darf es aber noch weiterer Rechnungen, die aus Kostengründen nicht nur eine Fortsetzung der hier dargestellten Simulationen sein können.

Das wichtigste Ergebnis der vorgelegten molekulardynamischen Simulationen der Cluster-Impakte dürfte also im Nachweis der Fluidisierung des oberflächennahen Impactbereiches liegen, die eine weitgehende Relaxation der Impactkrater erlaubt. Hochbeschleunigte atomare Ionen würden ihre kinetische Energie dagegen vor allem in wesentlich tiefe-

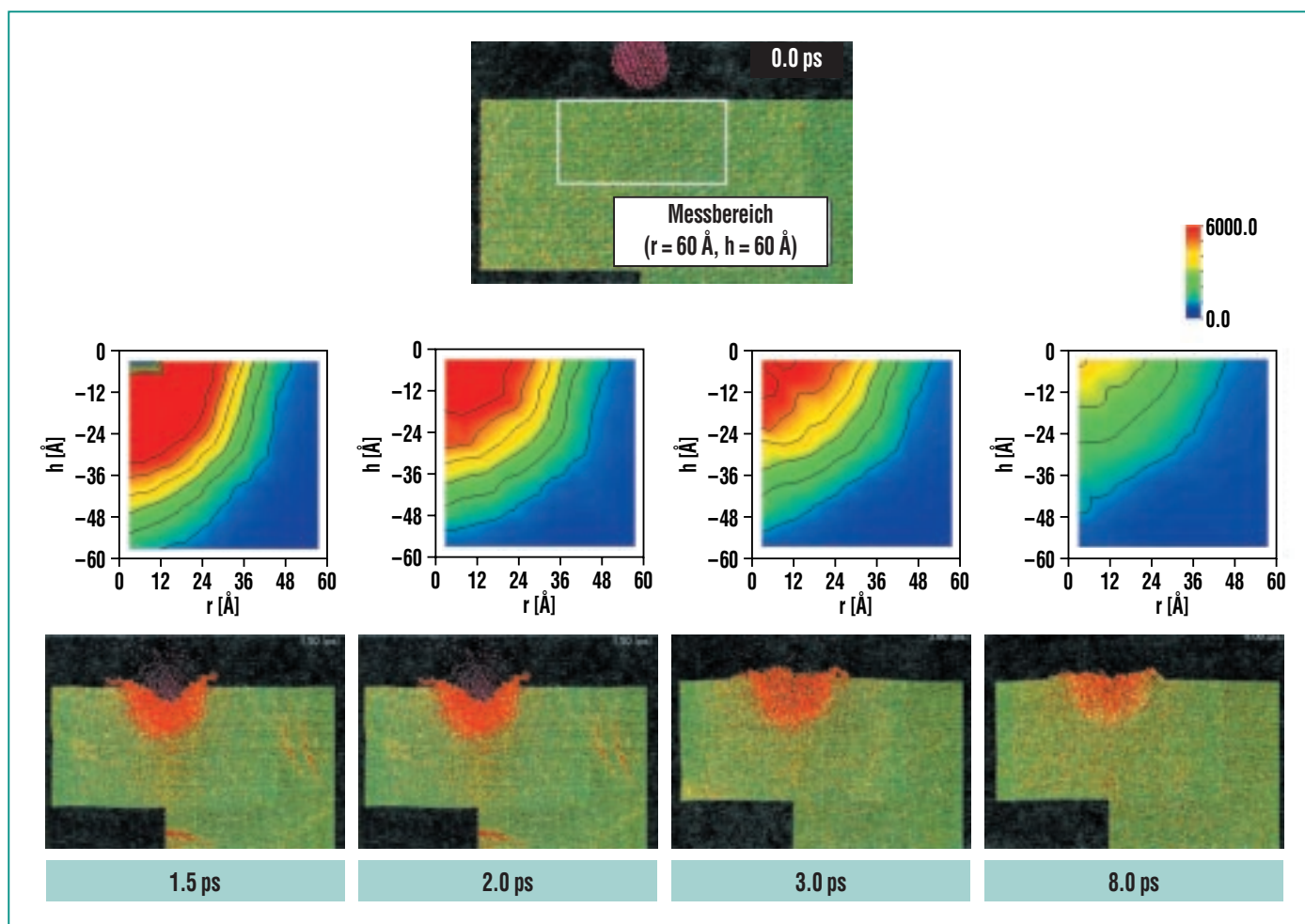


Abb. 6: Die Temperaturverteilung im Kraterbereich als Funktion der Zeit. Das Zentrum des relaxierten Kraters kühlt erst nach etwa 8 ps auf 4000 K ab und ist wenigstens solange als flüssig anzusehen.

ren Bereichen des getroffenen Materials deponieren, was keine Fluidisierung des oberflächennahen Bereiches und damit rauere Oberflächen zur Folge hätte.

### Mikroteilchen- und Meteoritenkrater

Wie einleitend erwähnt, lassen sich nur Meteoriteneinschläge mit den Impakten unserer hochbeschleunigten Cluster vergleichen. Meteoritenkrater sind jedoch nicht immer „einfache“ kalottenförmige Vertiefungen, sondern weisen, besonders bei größeren Durchmessern, auch sogenannte „komplexe“ Topologien auf, bei denen vor allem eine zentrale Erhebung wichtig ist. Abb. 7 zeigt als Beispiel den Krater Yuty auf dem Mars und daneben eine von uns beobachtete Struktur auf einkristallinem Silizium [1], beide mit ausgeprägter zentraler Erhebung. Die Struktur auf Silizium

stammt von einem Projektil, das wesentlich größer sein muss als ein Cluster und in unserem Strahl eine nicht genauer bekannte Verunreinigung darstellt. Die zentrale Spitze mit umgebender Krone ist eine Kombination von Erscheinungen, die vom Aufprall von Körpern auf Flüssigkeitsoberflächen bekannt sind. Diese Strukturen sind in den in Abb. 7 gezeigten Fällen jeweils erstarrt. Die Impaktstruktur auf Silizium wurde mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM) im sogenannten Kontaktmodus aufgenommen. Die Oberfläche wird dabei mit einer Tastspitze abgerastert, die so nah an die Oberfläche herangeführt wird, dass sie aufgrund der zwischenmolekularen Kräfte von der Oberfläche angezogen wird, wodurch sich ihr federnder Haltebalken verbiegt. Das Höhenprofil der Oberfläche ergibt sich dann aus der Höhenstellung der Spitze, die jeweils zu einer vorgewählten

Biegekraft führt. Beim Kontaktmodus ist die Kraft so groß, dass die Spitze die Oberfläche modifizieren kann, wenn das Oberflächenmaterial nicht ausreichend hart und starr ist. Die in Abb. 7 gezeigte Impaktstruktur auf Silizium muss also erstarrt und hinreichend stabil sein, wenn sie dem Abrastern standhält.

Wie kommt ein solcher flüssigkeitsartiger Materialrückschlag mit zentraler Erhebung zustande? Die oben gezeigten molekulardynamischen Rechnungen geben darauf bisher noch keine Antwort, aber auch im Falle der planetaren Impaktkrater scheint eine völlig überzeugende Erklärung noch auszustehen. Die aktuelle Antwort basiert auf dem Modell der sogenannten akustischen Fluidisierung, bei dem eine Mobilisierung von körnigem Material durch vom Impact übrig gebliebe-

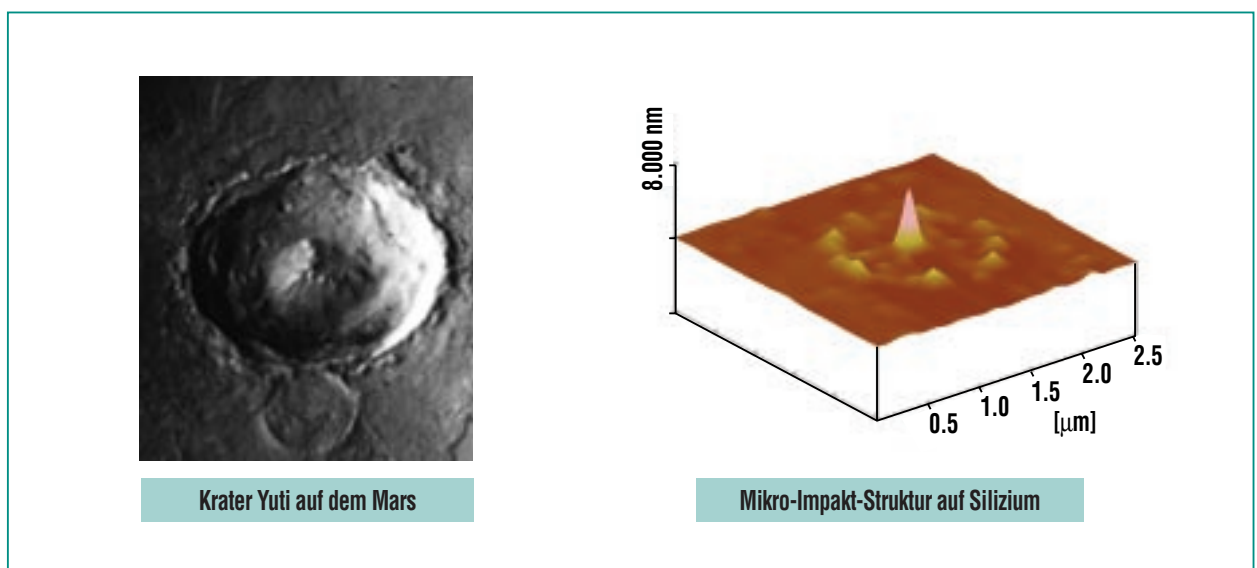


Abb. 7: Der Krater Yuty auf dem Mars mit 19 km Durchmesser und zentraler Erhebung im Vergleich mit einer Impaktstruktur mit zentraler Spitze von 3.5 nm Höhe auf einkristallinem Silizium, gemessen mit einem Rasterkraftmikroskop im Kontakt-Modus. Beide Strukturen vermitteln den Eindruck eines Aufschlags auf eine Flüssigkeit.

ne akustische Schwingungen angenommen wird [2].

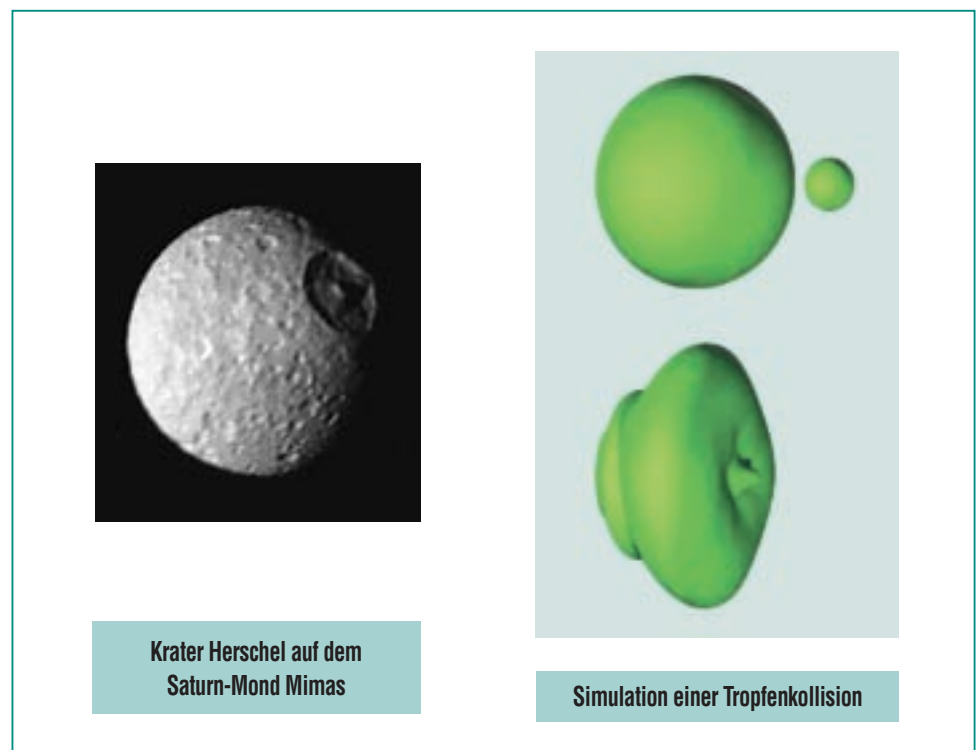
Abb. 8 zeigt eine Gegenüberstellung des gigantischen komplexen Kraters Herschel mit 130 km Durchmesser auf dem Saturn-Mond Mimas und einer Momentaufnahme aus einer Simulationsrechnung für den Aufprall eines Tropfens auf einen anderen Tropfen mit viermal größerem Durchmesser. Gezeigt sind die beiden Tropfen vor dem Impact und der größere Tropfen nach dem Eindringen des kleineren Tropfens zum Zeitpunkt des Erscheinens der zentralen Spitze.

Solche Simulationsrechnungen sind von Bedeutung wiederum vor allem in der Mikrotechnik, um etwa das Verhalten von Tintentröpfchen bei Tintenstrahldruckern oder von Pikoliter-Flüssigkeitsdispensern in biotechnischen Anwendungen zu verstehen. Im gezeigten Beispiel ist eine sogenannte „volume-of-fluid“-Navier-Stokes-Simulation durchgeführt worden, bei der eine inkompressible Flüssigkeit und freie diskontinuierliche Oberflächen mit Oberflächenspannung angenommen werden [8]. Bei der Behandlung von Strömungsvorgängen mit Hilfe der üblichen Navier-Stokes-Differentialgleichungen wird das strömende Medium als ein Kontinuum aufgefasst, in dem Größen wie Druck, Temperatur oder Strömungsgeschwindigkeit ortsabhängige Werte haben. In der „volume-of-fluid“-Methode wird eine weitere Größe eingeführt, nämlich der ortsabhängige Volumenanteil der Flüssigkeit in jedem der kleinen Teilvolumina, in

die die Gesamtströmung aufgeteilt („diskretisiert“) wird. Dadurch kann auch die Flüssigkeitsoberfläche einbezogen werden: Probevolumina, die nur teilweise von Flüssigkeit erfüllt sind, haben einen Flüssigkeitsvolumenanteil kleiner als 1 und führen zu einem Beitrag der Oberflächenspannung. Die flüssige Phase und die angrenzende Gasphase können in einem gemeinsamen Gleichungssystem behandelt werden. Insbesondere bei Systemen, bei denen Oberflächen entstehen oder verschwinden, wie z. B. beim Eindringen eines Tropfens in einen anderen, hat sich die „volume-of-fluid“-Methode als effizient erwiesen.

Fluidisierung durch Überschall-Impakt und Erstarrung kommen in den Simulationen nicht vor. Der Endzustand der in Abb. 8 gezeigten Tropfen-Tropfen-Wechselwirkung wäre also wieder eine vollkommene Kugel, ungleich dem impaktierten Saturn-Mond.

Der Kraterwall von Herschel markiert die laterale Ausdehnung des vorübergehend auf Mimas fluidisierten Bereiches. Im Falle der Kollision von bereits flüssigen Tropfen tritt ein entsprechender Kraterwall zeitweilig auch auf, verläuft aber dann zu einer den ganzen Tropfen erfassenden Oberflächenwelle. Um die partielle Fluidisierung einer festen Oberfläche zu erreichen, ist der



**Abb. 8:** Der Krater Herschel mit 130 km Durchmesser auf dem Saturn-Mond Mimas im Vergleich zur numerischen Simulation einer Tropfenkollision im Moment des Erscheinens der zentralen Rückschlagspitze. Eine Erstarrung ist in der Simulation nicht enthalten, sodass der Tropfen am Ende wieder vollkommen kugelförmig wird.

Energieeintrag durch den Hochgeschwindigkeitsimpakt erforderlich, während bei Flüssigkeitsoberflächen die Rückschlagphänomene bereits bei niedrigen Impaktgeschwindigkeiten zu beobachten sind.

Die Simulationsrechnung in Abb. 8 gilt für eine Flüssigkeit von sehr geringer Viskosität. So eine Flüssigkeit ist insbesondere auch das superflüssige Helium. Überschallstoßvorgänge auf Heliumcluster sollten daher auf diese Weise zu simulieren sein. Die kontinuumsmechanische Behandlung würde dadurch vertretbar, dass die atomare Struktur des flüssigen Heliums durch seine Quanteneigenschaften zu einem Quantenkontinuum verwischt wird.

## Zusammenfassung

Molekulardynamische Simulationen erlauben, die Hochgeschwindigkeits-Impakte von beschleunigten Clustern, die zur Mikro- und Nanostrukturierung von Oberflächen eingesetzt werden, im Einzelnen nachzubilden. Die Impaktkrater relaxieren aufgrund der Fluidisierung des impaktierten Materials praktisch völlig. Damit wird die äußerst geringe Rauigkeit der clustererodierten Flächen verständlich. Die Simulationen erklären auch die effektivere Erosion von Diamant bei reaktiver Clustererosion (RACE) mit hochbeschleunigten CO<sub>2</sub>-Clustern und die glattere Oberfläche bei rein physikalischer Erosion mit Ar-Clustern. Komplexe

Krater mit zentralen Erhebungen werden bei Mikroteilchen- und bei Meteoriten-Impakten ebenso wie in Simulationen von Tropfenkollisionen mittels der volume-of-fluid-Methode beobachtet, die jeweilige makroskopische Fluidisierung von impaktierten festen Oberflächen bleibt aber noch eine offene Frage.

## Literatur

- [1] C. Becker, H. Hoffmann, A. Gruber, J. Gspann, V. Saile, *Nachrichten – Forschungszentrum Karlsruhe* 31. 2-3/99, 89
- [2] H. J. Melosh, *Impact Cratering, Oxford University Press* 1989
- [3] A. Frohn, N. Roth, *Dynamics of Droplets, Springer Verlag* 2000
- [4] D. W. Brenner, *Phys. Rev. B* 42 (1992) 9458
- [5] Y. Yamaguchi, J. Gspann, *Europ. Phys. Journ. (im Druck)*
- [6] J. Gspann, *in: From Clusters to Crystals, P. Jena et al., eds., Kluwer Amsterdam* 1992, 463
- [7] C. Becker, J. Gspann, R. Krämer, *Europ. Phys. Journ. (im Druck)*
- [8] M. Rieber, M. Schelkle, *Spektrum der Wissenschaft* 1 (1999) 72

# Hochtemperatur-Supraleiter und die neuen Chancen für das Magnetische Schweben

V. Jung \*)

## Einführung

Seit etwa 1993 ist bekannt, dass gute Proben des Hochtemperatur-Supraleiters  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  bei einer magnetischen Flussdichte von 1,0 Tesla und einer Temperatur von 77 K kritische Stromdichten von  $10\,000\text{ A/mm}^2$  erreichen können [1, 2], die dieses Material für den Bau großer Hochfeld-Magnete interessant machen. Da eine Kühlung mit flüssigem Stickstoff bei 77 K wesentlich einfacher und kostengünstiger ist als die für Tieftemperatur-Supraleiter wie z. B. NbTi erforderliche Kühlung mit flüssigem Helium, versprechen Hochtemperatur-Supraleiter neue Chancen für den technischen Durchbruch der Supraleitung.

Im Forschungszentrum Karlsruhe wurde ein supraleitendes magnetisches Lager mit  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (im folgenden als YBaCuO abgekürzt) gebaut, das einer im Vakuum rotierenden Schwungmasse erlaubte, in 24 h nur ca. 1% seiner Rotationsenergie zu verlieren [3]. Ähnliche Untersuchungen werden auch an anderer Stelle vorangetrieben [4 bis 8]. Supraleitende Magnetschwebesysteme, welche entlang einer aktiven Bahn – mit Permanentmagneten oder Elektromagneten – bewegt werden können, werden in Deutschland [4, 5, 11], China [10], Brasilien [12] und Südafrika [13] untersucht. Japan entwickelt bekanntlich schon seit 1974 eine Magnetschwebebahn mit Tieftemperatur-Supraleiter-Magneten im Fahrzeug, eine entsprechende deutsche Testbahn in Erlangen wurde ca. 1980 abgebaut.

Die kommerzielle Anwendung der Hochtemperatur-Supraleiter wird allerdings durch ihre besonderen Materialeigenschaften erheblich erschwert. Es handelt sich um Oxide, die Supraleitung, d. h. verlustfreien Transport elektrischen Stromes, hauptsächlich in bestimmten Kristallebenen (a-b-Ebene) zeigen. In der dazu senkrechten Richtung (c-Achse) findet kaum Supraleitung statt. Die jeweilige Ausrichtung der Kristallite, die sogenannte Textur einer Probe, ist also von ausschlaggebender Bedeutung (anders als bei den klassischen Tieftemperatur-Supraleitern). Eine gewünschte Textur lässt sich dadurch erzielen, dass beim Erstarren aus der Schmelze ein Saatkristall die Orientierung vorgibt. Dieses als Schmelztexturierung bezeichnete Verfahren erlaubt größere, fast einkristalline Proben – oder mit mehreren Saatkristallen auch solche mit variierender Kristallorientierung – zu erzeugen, die für das magnetische Schweben erforderlich sind. Im folgenden wird über Texturuntersuchungen im besonderen [9] und das magnetische Schweben im allgemeinen berichtet. Dabei ist der mit normalleitenden Magneten arbeitende deutsche Schwebezug Transrapid von herausragender Bedeutung.

## Anwendungen neuer Supraleiter bei berührungsfreien Transporttechniken

Der Transrapid arbeitet mit einem auf Anziehung basierenden elektromagnetischen Schwebesystem.

Ein solches System ist inhärent instabil, da die Anziehungskraft mit abnehmendem Schwebearstand anwächst. Stabilität wird durch ein sehr schnelles Regelsystem hergestellt, bei welchem Induktionsspulen ständig den Schwebearstand messen und das elektromagnetische Feld entsprechend nachregeln.

Der spezifische Leistungsbedarf zum Aufrechterhalten des Schwebearstandes beträgt hier 2 bis 4 kW/t. Er ist im wesentlichen unabhängig von der Geschwindigkeit. Daher ist es ungünstig, ein Schwebesystem langsam fahren zu lassen. Erst bei einer Geschwindigkeit von 200 km/h ist der Transrapid energetisch günstiger als das Rad/Schiene-System [14].

Einen etwa 10fach höheren Energieverbrauch pro Zeiteinheit weist das noch in Japan geförderte elektrodynamische Schwebesystem auf. Dies liegt daran, dass die Reaktionsschienen in der Trasse, in welchen die supraleitenden (Tieftemperatur)-Magnete des Schwebefahrzeugs Wirbelströme induzieren, nur normalleitend sind. Somit entstehen hohe Ohmsche Verlustleistungen in den Reaktionsschienen der Trasse [15].

Würde dieses elektrodynamische Schwebesystem nun umgedreht, d.h. würden von Permanentmagneten in der Trasse hohe Induktionsströme in massiven Hochtemperatur-Supraleitern im Fahrzeug induziert, so erreichte man einen spezifischen Energieverbrauch, der nur durch den Aufwand für die Kühlung der Supra-

\*) Dr. Volkhard Jung, Elbinger Str. 2a, 76139 Karlsruhe

leiter mit flüssigem Stickstoff und durch den Luftwiderstand des Fahrzeugs bedingt wäre. Durch gute thermische Isolation könnte der Energieaufwand zur Stickstoffkühlung der Supraleiter stark minimiert werden. Zur Reduzierung des Luftwiderstandes gibt es Ideen, das Fahrzeug in einem teilevakuierten Rohr verkehren zu lassen [16], [17].

Um in den Supraleitern des Schwebefahrzeugs keine hohen Verluste entstehen zu lassen, muss das Magnetfeld der Trasse in Bahnrichtung sehr gut konstant sein, bis auf etwa 1%. Transversal zur Bewegungsrichtung soll es durchaus variieren, wie aus Abb. 1 hervorgeht. In dieser Ab-

bildung ist das Schwebeprinzip für nur eine Spur dargestellt. Es werden 2 Spuren der in Abb. 1 gezeigten Schwebeanordnung benötigt, entsprechend einer Achse mit 2 Rädern. Die transversale Stabilität wird durch sogenannte „Pinning“-Kräfte im Supraleiter hergestellt. Hierfür wären im normalleitenden Falle seitliche Reaktionsleiter am Fahrzeug nötig.

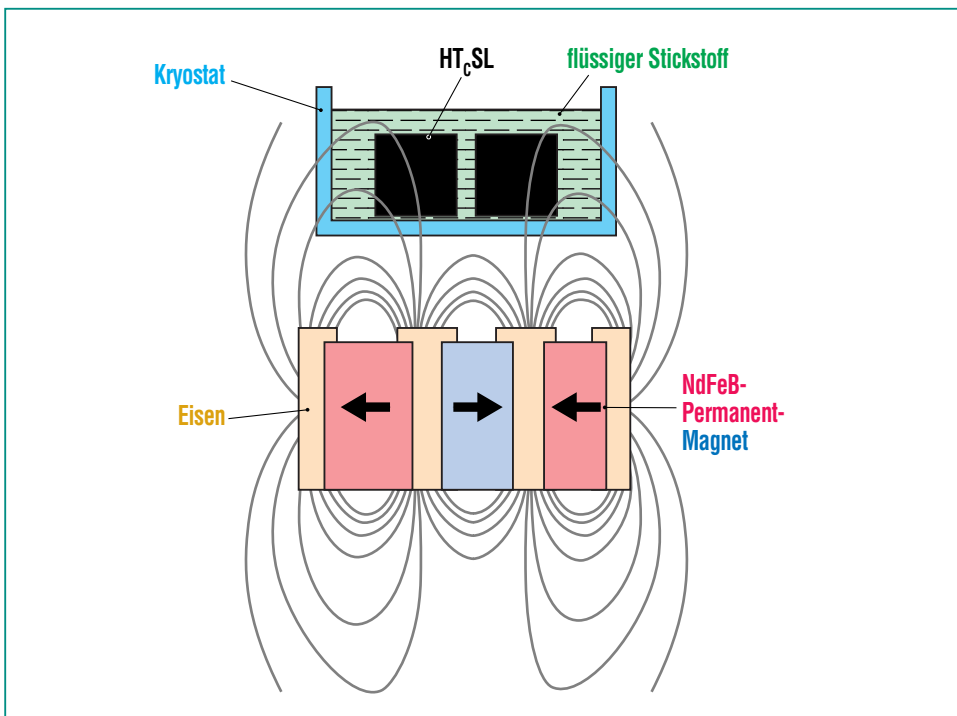
In technisch einsetzbare, sogenannte „harte“ Supraleiter dringt magnetischer Fluss in Form von Flussschläuchen ein, die an Störstellen im Supraleiter, meist normalleitenden Ausscheidungen, durch Haftkräfte, die erwähnten Pinning-Kräfte, festgehalten wer-

den. Somit treten transversal zur Bahnrichtung retardierende Kräfte auf und der Schwebezustand ist transversal stabil. Vertikal ist der Schwebezustand ohnehin stabil, da bei Annäherung an das inhomogene Magnetfeld der Trasse ein höherer Strom im Supraleiter induziert wird, dessen Magnetfeld die abstoßende Kraft gegen die Trasse verstärkt. Im Gegensatz zum Schweben aufgrund magnetischer Anziehung, wie beim Transrapid, aber auch bei magnetischer Abstoßung zwischen zwei Permanentmagneten, ist das Schweben aufgrund magnetischer Abstoßung bei supraleitenden Lagern also selbststabilisierend.

Da der magnetische Fluss im Supraleiter nicht nur eine Vertikal-Komponente sondern auch eine Transversal-Komponente aufweist, wirken die Pinning-Kräfte auch vertikal dämpfend, ja sie wirken sogar anziehend, wenn das Schwebefahrzeug z.B. durch äußere Kräfte abgehoben wird. Dies lässt sich anhand eines Modells mit Supraleitern im Fahrzeug und Permanentmagneten auf der Trasse demonstrieren, wenn die Spur umgedreht wird und das dann nach unten hängende Schwebefahrzeug trägt [5].

**Spulen in der Trasse anstelle von Permanentmagneten**

Nun wäre es sehr teuer, eine Trasse mit Permanentmagneten (selbst mit solchen aus Ferriten [12]) auszustatten. Als Alternative wird ein Schwebesystem vorgeschlagen, bei welchem normal-

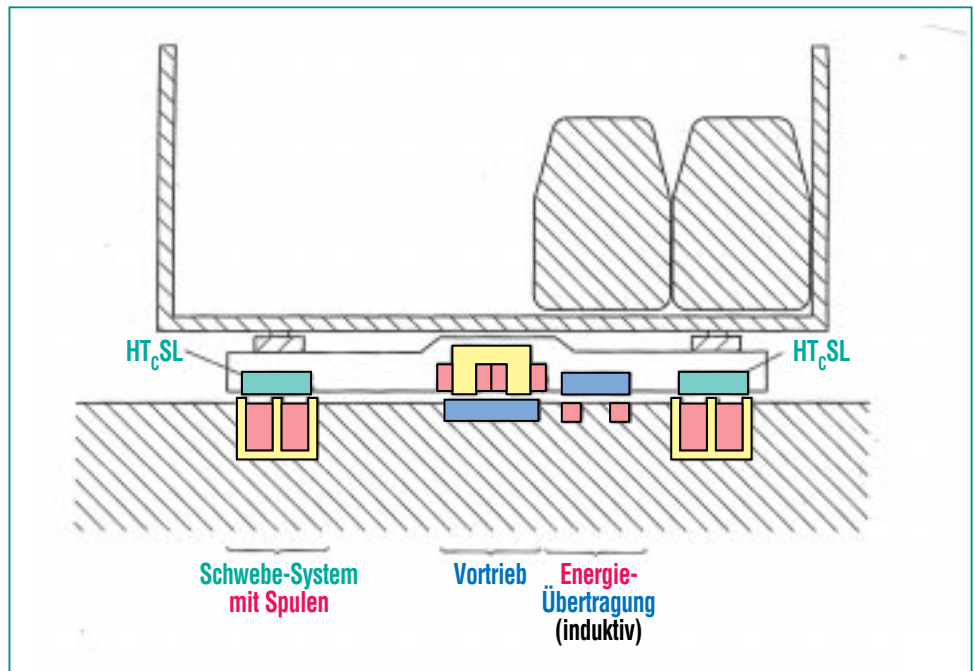


**Abb. 1: Schwebevorrichtung von massiven YBaCuO-Blöcken, in welchen die magnetischen Felder von Permanentmagneten in der Trasse, verstärkt durch Weicheisenkerne, Supraströme induzieren, die ihrerseits abstoßende Magnetfelder erzeugen. In die Supraleiter dringt magnetischer Fluss in Form von Flussschläuchen ein, die durch Haftzentren festgehalten werden („Pinning“) und dadurch für Stabilität auch in transversaler Richtung sorgen.**

leitende Spulen in der Trasse verlegt sind, die nur temporär erregt werden müssten, nämlich nur dort, wo sich gerade das Schwebefahrzeug befindet (Abb. 2).

Normalleitende Spulen in der Trasse sind verständlicherweise, wie in Abb. 2 zu sehen ist, von Eisenjochen mit E-förmigem Querschnitt eingehüllt. Dadurch entsteht eine ähnliche Feldverteilung wie im Falle von Permanentmagneten in der Trasse (Abb. 1). Die normalleitenden Spulen mit Eisen-Umhüllung induzieren in den Hochtemperatur-Supraleitern im Fahrzeug in gleicher Weise Ströme wie Permanentmagnete, wenn das Fahrzeug von oben auf die Trasse aufgesetzt wird oder die Supraleiter unter ihre sogenannte kritische Temperatur abgekühlt werden (Meißner-Effekt). Das von den induzierten Strömen erzeugte Gegenfeld wirkt abstoßend auf das Feld der Trassenspulen.

Auch beim Transrapid wird die Vortriebseinrichtung, der Langstator-Linear-Motor, nur örtlich erregt. Deswegen steigt der Wirkungsgrad des Langstatorantriebes auch mit zunehmender Zuglänge des Transrapid. Bei einem 200 m langen Zuge wird ein Wert von 95% erreicht, der bei nur 50 m Zuglänge auf 80% abfällt [14]. Ein Linearantrieb kann entweder aktiv vom Schwebefahrzeug aus wirken oder auch aktiv von der Trasse aus wie beim Transrapid. In Abb. 2 ist ein aktives Fahrzeug dargestellt. Die Energieversorgung erfolgt – wie auch beim Transrapid – über einen Induktionsleiter.



**Abb. 2: Alternative Schwebeanordnung mit Supraleitern im Schwebefahrzeug, aber mit normalleitenden Magnetspulen in der Trasse. Die Weicheisenkerne, welche die Spulen umhüllen, geben dem magnetischen Feld der Trasse eine ähnliche Konfiguration wie die Permanentmagnete in Abb. 1.**

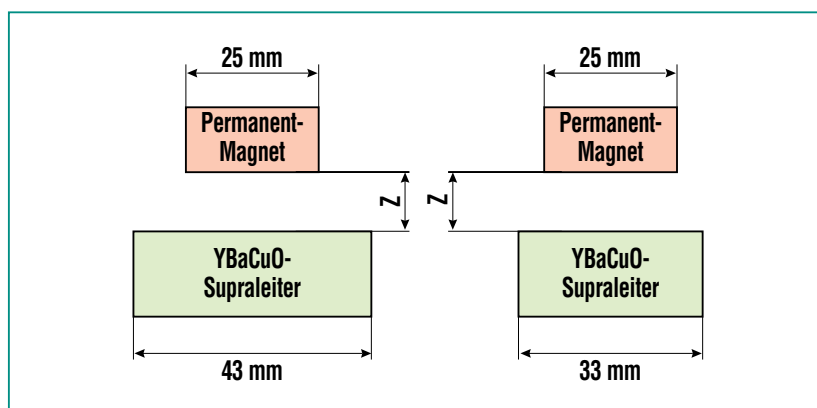
Bei langsamen Bewegungen eines Schwebefahrzeuges nach Abb. 2 könnten die Speiseabschnitte der Trassenspulen kurz gehalten werden, so dass die Ohmschen Verluste in ihnen erträglich blieben. Supraleitende Spulen in der Trasse sind jedenfalls wegen der enormen Kühlprobleme und der Vereisung der Trasse auch mit den heutigen „Hochtemperatur“-Supraleitern nicht praktikabel.

### Selbststabilisierende supraleitende magnetische Lager

Im Gegensatz zu Linearbewegungen von supraleitenden Schwebefahrzeugen benötigen supraleitende selbststabilisierende magnetische Lager nur einige

ringförmige Permanentmagnete mit einer Induktion von z.B. 0,46 T an der Oberfläche. (Permanentmagnete höherer Induktion, z. B. aus Sm Fe Co, würden etwa die doppelte Magnetisierung liefern. Sie sind jedoch teuer und würden höhere Anforderungen an die Qualität der Texturen in den YBaCuO-Supraleitern stellen.) Bei dieser Induktion ist es gelungen, einen fast vollständigen Spiegelfluss im Supraleiter zu induzieren. Immerhin wurden 95% der theoretisch möglichen abstoßenden Kraft gemessen. Bei schlechter Textur und regellosem Anteil in der Probe wurden manchmal nur 35% der theoretisch maximal möglichen Abstoßungskraft gemessen.

In Abb. 3 ist die geometrische Anordnung von Permanentmagnet



**Abb. 3: Messkonfiguration von Zylindern aus YBaCuO mit unterschiedlichen Durchmessern und einem zylindrischen Permanentmagneten. Bei guter Textur des YBaCuO wird jeweils der Spiegelfluß im Supraleiter induziert. Die abstoßende Kraft erwies sich in beiden Fällen als gleich groß.**

mit 25 mm Durchmesser und zwei YBaCuO-Proben mit 43 mm bzw. 33 mm Durchmesser gezeigt. Interessant ist dabei die Tatsache, daß bei gleich guter Textur beide Proben von 43 mm Durchmesser und von 33 mm Durchmesser gleiche Abstoßungskräfte erbringen, denn das Streufeld des Permanentmagneten greift nicht weiter als über die Probe mit 33 mm Durchmesser hinaus. So wird in beiden Fällen der Spiegelfluß des Permanentmagneten von 25 mm Durchmesser in den Supraleitern induziert.

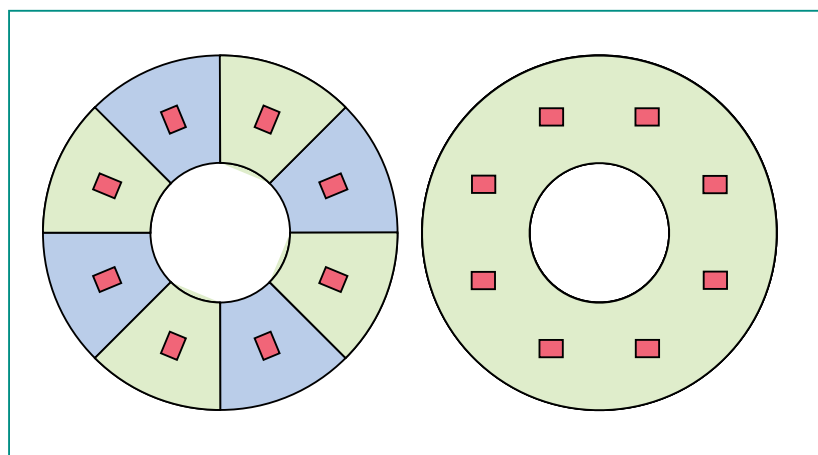
Aus Messungen der abstoßenden Kräfte gewinnt man die Kennlinien. Bei Annäherung bzw. bei Entfernung des Permanentmagneten vom YBaCuO-Supraleiter ergeben sich die obere bzw. die untere Messkurve. Der Hysterese-Effekt entsteht durch Abschirmung des Feldes des Permanentmagneten im Supraleiter.

Bei einem bestmöglich texturierten YBaCuO-Zylinder von 43 mm

Durchmesser wurde mit dem Permanentmagneten von 25 mm Durchmesser und einer Induktion von 0,46 T eine maximale abstoßende Kraft von 94,5 N er-

reicht. Bezieht man diese Kraft nur auf die Oberfläche des Permanentmagneten, so resultiert ein Druck von  $19,3 \text{ N/cm}^2$  auf den supraleitenden Zylinder. Berücksichtigt man allerdings, dass der Streufluss des Permanentmagneten weiter über den Rand des Permanentmagneten hinausreicht, so erhält man einen Maximaldruck von  $15,9 \text{ N/cm}^2$ . Diesem Druck muss der keramische Supraleiter standhalten und nicht zerbröckeln – möglichst während seiner ganzen Lebensdauer. Immerhin wurden mit der genannten Probe ca. 95% der theoretisch möglichen maximalen Abstoßungskraft erreicht.

Aus 8 ähnlich gut texturierten YBaCuO-Zylindern wurden 8 keilförmige Stücke geschnitten und zu einer Kreisringscheibe von ca.



**Abb. 4: Linke Seite: Wenn aus den zylindrischen YBaCuO-Proben keilförmige Stücke geschnitten werden und diese Stücke zu einem Kreisring zusammengesetzt werden, stellen die Schnittstellen ein Hindernis dar. Die Anordnung der Saatkristalle kann dann beliebig geschehen.**

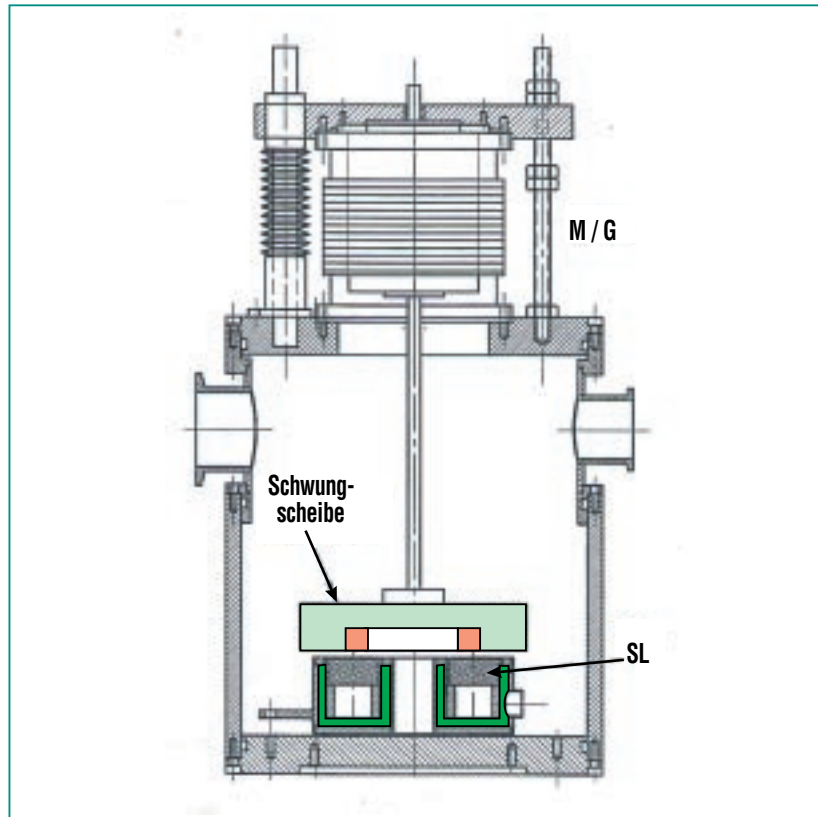
**Rechte Seite: Wenn eine YBaCuO-Kreisringscheibe als Ganzes schmelztexturiert wird, ist es nötig, alle 8 Saatkristalle mit gleicher Orientierung der a-/b-Achsen in die erstarrende Schmelze zu implantieren. Dann gibt es in den Grenzbereichen zwischen zwei benachbarten Saatkristallen keine Fehlorientierungen der a-/b-Achsen um die dazu senkrechte c-Achse.**



12 cm Durchmesser zusammengesetzt (siehe Abb. 4). Über dieser Kreisringscheibe schwebt ein ringförmiger Permanentmagnet, der seinerseits eine Schwungmasse trägt. Diese Schwebeanordnung ist im Schnitt in Abb. 5 zu sehen. In einer früheren Anordnung wurden 6 YBaCuO-Zylinder verwendet, auf welchen ein ringförmiger Permanentmagnet schwebte [18]. In fortgeschrittenen Versionen magnetischer Lager sind 2 solcher Lager gekoppelt, wie sie in Abb. 5 dargestellt sind. Zur Erhöhung der Tragkraft können jeweils 3 solcher Schwebeanordnungen stockwerkartig übereinander gelagert werden, so dass insgesamt 6 dieser Anordnungen das magnetischer Lager bilden.

### Neuere Entwicklungen von ringförmigen schmelztexturierten YBaCuO-Scheiben

Anstatt aus 8 schmelztexturierten YBaCuO-Zylindern von 43 mm Durchmesser 8 Segmente für eine Kreisringscheibe zu schneiden, werden künftig Kreisringscheiben von ca. 12 cm Durchmesser mit Hilfe von z. B. 8 Saatkristallen durch Bekeimen der YBaCuO-Schmelze hergestellt. Ob es nun 8 Saatkristalle sein können oder vielleicht mehr erforderlich sein werden, müssen künftige Neutronen-Texturuntersuchungen im GKSS-Forschungszentrum Geesthacht zeigen. Im kleinen Rahmen können diese Untersuchungen der Textur mit Röntgen-Beugung auch im Forschungszentrum Karlsruhe durchgeführt werden. Doch ist klar, dass mit Röntgenbeugung



**Abb. 5: Schnitt durch einen Rotor mit selbststabilisierendem supraleitendem magnetischen Lager. Der induzierende ringförmige Permanentmagnet ist in die Schwungscheibe eingelassen. Oben befindet sich ein Motor- und Generator-Teil. Die Anlage dient der Speicherung von Energie.**

nur eine Aussage über die Textur an der Oberfläche der Kreisringscheiben möglich ist.

Besonders die Frage nach der Güte der Texturierung im Grenzbereich zwischen den Einflusssphären zweier benachbarter Saatkristalle auf den YBaCuO-Kreisring-Scheiben könnten nur Neutronen-Textur-Messungen im GKSS-Forschungszentrum Geesthacht beantworten. Dass allein aus Röntgen-Textur-Messungen, die auch in Karlsruhe möglich sind, keine Schlüsse auf die Textur im gesamten Volumen zu ziehen sind, geht eindeutig aus un-

seren [19] Neutronen-Textur-Messungen in Geesthacht hervor. Dabei wurde eine YBaCuO-Probe mit einer Tragkraft von 94,5 N – gegenüber einem Permanentmagneten von 25 mm Durchmesser und 0,46 T Induktion –, die zuvor in Karlsruhe in viele Teile zerschnitten wurde, auf die Variation der Textur im gesamten Volumen untersucht. Es zeigten sich erhebliche Schwankungen innerhalb eines Randstückes der zerschnittenen Probe. Dieses Randstück wurde wiederum vertikal in 3 Schichten zerteilt, so dass die Variation der Textur von der Oberfläche mit dem Saatkri-

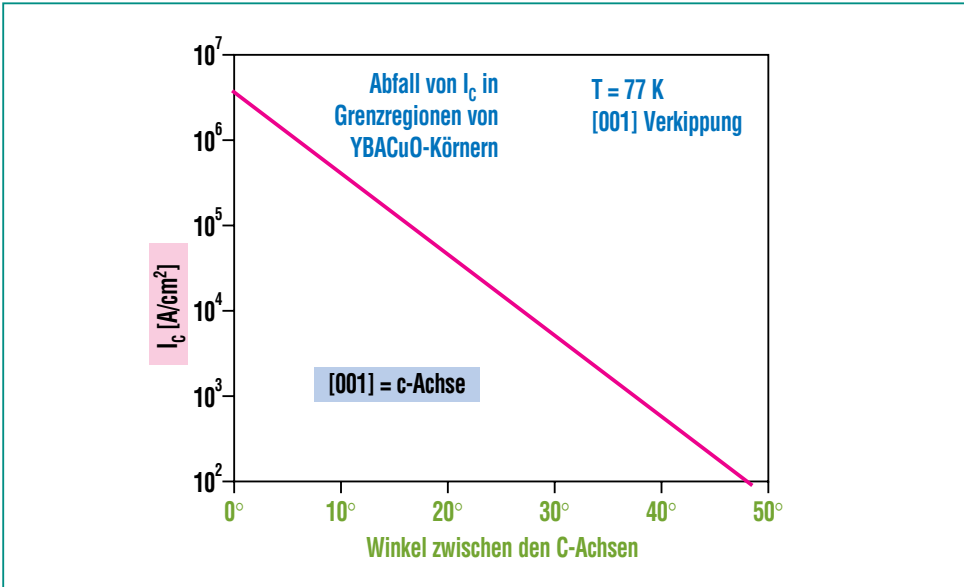


Abb. 6: Abfall der maximal induzierbaren Stromdichte, wenn die c-Achsen benachbarter Körner einen Winkel einschließen. Eine Verkipfung um  $10^\circ$  reduziert die maximal induzierbare Stromdichte bereits auf ein Zehntel.

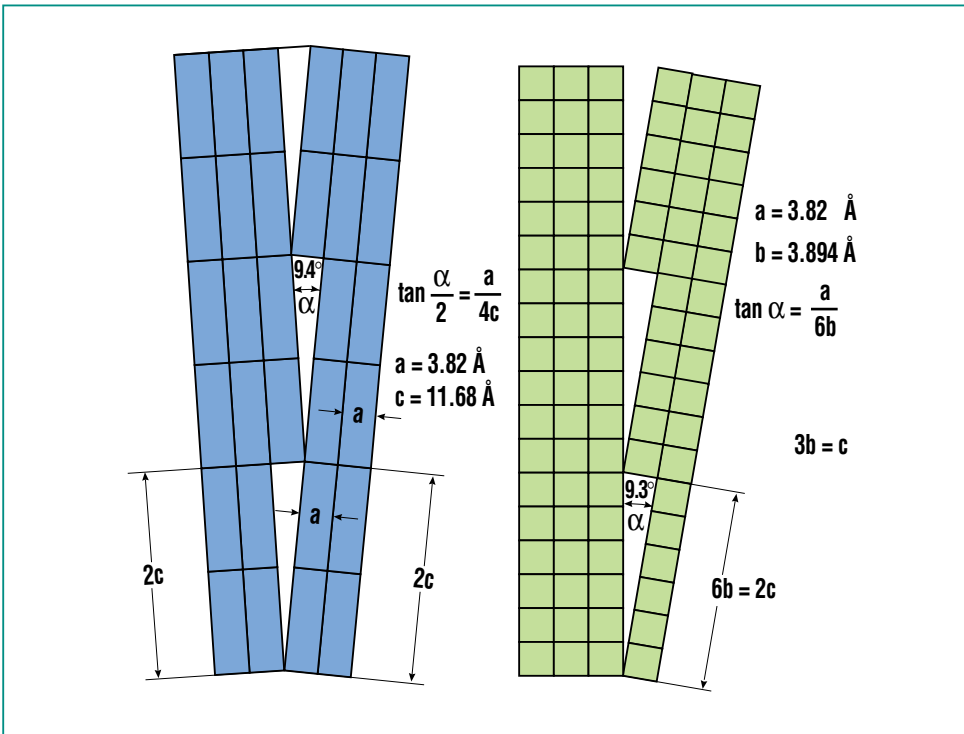


Abb. 7: Mögliche Konfigurationen an den Korngrenzen zweier benachbarter Körner. Links ist eine Verkipfung der c-Richtung, rechts eine Verdrehung in der a-b-Ebene um die c-Achse gezeigt. Solche Konfigurationen würden die maximal induzierbare Stromdichte bereits auf ein Zehntel des Wertes reduzieren, welche ohne Verkipfung bzw. Verdrehung der Körner zu erwarten ist.

stall in die Tiefe untersucht werden konnte. Die Halbwertsbreite der c-Achsen-Richtungsverteilung lag in der Mitte der Probe bei  $5,7^\circ$ . In einem Randstück stieg diese Halbwertsbreite bis auf  $10^\circ$  an, jedoch nur an der Oberfläche. Darunter lag die Halbwertsbreite der c-Achsen-Richtungsverteilung bei nur  $3^\circ$ , und an der Unterseite wurden  $4^\circ$  gemessen.

(Die Richtungsverteilung der c-Achsen wurde mit Hilfe des (005) Reflexes und die der a- bzw. b-Achsen am (113) Reflex gemessen. Die gesamte Polkugel wurde schließlich mit Hilfe des (002) Reflexes auf parasitäre Orientierungen von c-Achsen abgefahren [19].) Auch ein eventueller regelloser Anteil der Probe konnte durch Vergleiche der Reflexintensitäten im Maximum der Texturverteilung ermittelt werden. So wurde bei einer Probe mit nur halber Tragkraft, aber schmaler c-Achsen-Richtungsverteilung, ein regelloser Anteil in der Probe von etwa 50% ermittelt.

Es ist unschwer einzusehen, dass es innerhalb einer Probe keinen regellosen Anteil geben darf. Bei einem regellosen Anteil kommen sehr große Winkel zwischen den c-Achsen benachbarter Körner vor, wodurch die induzierbare Suprastromdichte ganz erheblich reduziert wird, wie im Folgenden noch näher erläutert wird. Abb. 6 zeigt den Abfall der maximal induzierbaren Stromdichte als Funktion des Winkels zwischen den c-Achsen [20]. Bereits bei einem Winkel von  $10^\circ$  liegt eine Reduktion auf  $1/10$  vor. Abb. 7 zeigt, wie solche Winkel durch Verkipfung oder Verdre-

hung in der a-b-Ebene zustandekommen.

Wenn die gesamte Probe gut texturiert ist, mit einer c-Achsen-Richtungs-Verteilung, deren Halbwertsbreite bei 5 bis 6° liegt, die a- bzw. b-Achsen-Richtungs-Verteilungen ähnlich gute Werte aufweisen und die Probe auch keine Mikrorisse hat, steht einer maximalen magnetischen Tragkraft nichts mehr im Wege. Bei großen Kreisringscheiben aus YBaCuO ist jedoch die Gefahr von Mikrorissen größer als bei massiven Zylindern von 43 mm Durchmesser. Bereits bei den massiven Zylindern werden Stahlbandagen zur Vermeidung von Rissausbreitung bei hohen Feldern eingesetzt [21]. Mit den Kreisring-Scheiben von 12 cm Außendurchmesser wird Neuland betreten.

### Gründe für die Reduzierung der maximal induzierbaren Stromdichte im Supraleiter

Ist die Breite der c-Achsen-Richtungs-Verteilung klein, so treten auch kleine Winkel zwischen den c-Achsen benachbarter Körner auf. Doch gibt es – abhängig von der Korngröße – keine feste Korrelation zwischen beiden Verteilungen, der globalen Textur-Verteilung und der Verteilung der Größe der Winkel zwischen den c-Achsen jeweils benachbarter Körner. Bei gleicher Verteilungsbreite der Richtungen aller c-Achsen zweier YBaCuO-Proben kann es durchaus unterschiedliche Verteilungsbreiten der Größe der Winkel zwischen den c-Achsen jeweils benachbarter YBaCuO-

Körner geben. Die globale Texturverteilung ist also nur ein grober Richtwert, der erwarten lässt, dass auch die Winkel zwischen den c-Achsen benachbarter Körner in gewissen Grenzen liegen.

Wichtig für die Größe des induzierbaren supraleitenden Stromes ist aber die Größenverteilung der Winkel zwischen den c-Achsen benachbarter Körner und die Zahl der zu überwindenden Grenzbereiche zwischen den Körnern. Um die Verteilung der Winkel zwischen den c-Achsen benachbarter Körner zu erfassen, wären zusätzliche Korn-Korn-Korrelationsmessungen nötig.

Wie aus Abb. 6 zu ersehen ist, sinkt die maximal induzierbare Stromdichte im Grenzbereich zwischen 2 benachbarten Körnern auf 1/10 des Maximalwertes, wenn die c-Achsen benachbarter Körner einen Winkel von 10° einschließen. Bei Verdrehungen um die c-Achsen, sogenannten Twists, also einem Winkel zwischen den a- bzw. b-Achsen benachbarter Körner, sinkt die maximal induzierbare Stromdichte in ähnlicher Weise ab wie bei der Verkippung der c-Achsen [20]. Warum dies so ist, lässt sich noch nicht befriedigend erklären. Die Cooper-Paare der Supraleitung bewegen sich bevorzugt in den a-b-Ebenen der Kristallite aus YBaCuO. Und da darf es keine zu großen Lücken geben, sonst brechen die Cooper-Paare auseinander. In Abb. 7 ist eine Konstellation benachbarter Körner für die Verkippung der c-Achsen und auch für die Verdrehung um die c-Achsen gezeigt. Man könnte sich auch vorstellen, daß bei der an-

gegebenen Konfiguration der Querschnitt, auf welchem die Cooper-Paare hinüberspringen können, auf ca. 1/10 des Wertes sinkt, welcher bei fehlender Verkippung bzw. bei nicht vorhandener Verdrehung um die c-Achsen sich den Cooper-Paaren darbietet.

### Aussichten für die Hochtemperatur-Supraleitung

In welchem Maße Hochtemperatur-Supraleiter für magnetische Lager in Zukunft technische Anwendung finden werden, ist schwer abzuschätzen. Magnetische Lager werden vorerst ohne Supraleiter verwendet, z.B. bei Turbo-Molekularpumpen und bei Neutronen-Choppern [22], oder versuchsweise mit wenigstens supraleitender Stabilisierung [23]. Weitere Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der supraleitenden selbststabilisierenden magnetischen Lager wird hauptsächlich in Deutschland [24-26] und in Japan [27-29] durchgeführt.

In der Transporttechnik mit der berührungsfreien Beförderung von Personen und Gütern, auch innerbetrieblich bei Reinstraumbedingungen, ist vielleicht eher ein Durchbruch für die Supraleitung denkbar.

Die keramischen Hochtemperatur-Supraleiter, wie z.B. das YBaCuO, bringen als wichtigen Vorteil den Wegfall der Kühlung mit flüssigem Helium. Dafür sind die Anforderungen an die Textur, die jeweilige Kristallitorientierung des Materials, wie hier gezeigt wurde, erheblich.

Im Januar diesen Jahres 2001 wurde nun überraschenderweise ein neuer Supraleiter, das Magnesiumdiborid, entdeckt, dessen Sprungtemperatur immerhin 39 K beträgt [30]. Dieses Material ähnelt in vieler Hinsicht den klassischen metallischen Tieftemperatur-Supraleitern, auch im Hinblick auf geringe Texturanforderungen. Vielleicht sind auf dieser Basis in einigen Jahren gut verarbeitbare Supraleiter verfügbar, deren Sprungtemperaturen ebenfalls nur Kühlung mit flüssigem Stickstoff erfordern. Das würde neue Aussichten für das magnetische Schweben eröffnen.

### Zukunft der Magnetschwebbahn

Die geplante Verbindung des Transrapid zwischen Hamburg und Berlin scheiterte nicht nur an zu hohen Kosten für die Trasse, sondern auch daran, dass die Deutsche Bahn AG sich selbst mit dem Transrapid Konkurrenz aufgebaut hätte und auf der bestehenden Rad-Schiene-Verbin-

dung durch Abwanderung von Fahrgästen Einnahmeverluste von ca. 230 Mio DM/Jahr hätte erwarten müssen [31].

Anders sieht es im Ruhrgebiet aus, wo ohnehin ein Verkehrs-Engpass besteht. Dort könnte auf einer ca. 100 km langen Städte-Verbindung ein schnelles Regional-Verkehrssystem für etwa 3 Mrd. DM eingerichtet werden. Bei einem mittleren Stationsabstand von ca. 15 km käme zwar nur eine Maximalgeschwindigkeit von 280 km/h in Frage, doch bei dieser Geschwindigkeit ist der Transrapid energetisch schon günstiger als z. B. der ICE 3. Auch wäre die Lärmbelastung gegenüber dem ICE 3 rund 5 dB(A) geringer [32]. Gegenüber herkömmlichen IC-Zügen wären es sogar bis zu 20 dB(A).

Da nun die aktive Trasse, in welcher der Antrieb ortsfest installiert ist, aber eine hohe Kapitalbindung mit sich bringt, ist der Transrapid nur bei einem sehr hohen Fahrgastaufkommen rentabel. Dabei muss der Besetzungsgrad

eines Zuges über die gesamte Strecke gemittelt werden. Die Auslastung einer Strecke wird deswegen in Personenkilometer/Streckenkilometer und Jahr angegeben. Eine Auslastung von 12 Mio. Pers.-km/Strecken-km.a wäre wohl für den kapitalintensiven Transrapid nötig. Bei einer mittleren Platzausnutzung von 50% (dabei müssen schon manche Fahrgäste stehen) könnten Transrapid-Züge von 4 Sektionen Länge (4 Wagen) in einem mittleren 10-Minuten-Takt (verdichtet in den Hauptverkehrszeiten und verdünnt in den Schwachlastzeiten) bei 108 Fahrten pro Tag und Richtung das Ruhrgebiet als Superschnellbahn erschließen. Wenn ein Zug 320 Plätze aufweist und das Jahr wegen des Verkehrsrückganges an Feiertagen mit 347 Tagen/a berechnet wird, ergeben sich bei 50% Platzausnutzung die durchschnittlichen 12 Mio. Fahrgäste pro Jahr auf der ganzen Strecke.

Bei einem mittleren Stationsabstand von 15 km, bei effektiver Beschleunigung und Verzögerung von  $1,0 \text{ m/s}^2$  und einer halben Minute Haltestellen-Aufenthaltszeit ergeben sich 180 km/h als Reisegeschwindigkeit. Steigt die Haltezeit auf 1,5 Minuten an, so können nur noch 150 km/h als Reisegeschwindigkeit erreicht werden.

Wenn öffentliche Investitionen getätigt werden, ist ein Realzins von 3% in Ansatz zu bringen (Zinssatz 6% abzüglich 1,5% Verzicht auf Zinsabschlagsteuer und 1,5% Inflationsrate ergibt 3% Realzins). Bei Investitionskosten von 3 Mrd. DM für 100 Streckenkilometer und einem Realzins



Abb. 8: Der Transrapid 07 auf einer Trasse in Hochlage.

von 3% wäre bei 12 Mio. Personen-km/Strecken-km.a der Personenkilometer mit 7,5 Dpf/Person und km vorbelastet. Dieser Wert erscheint erträglich. Bei nur 6 Mio. Pers.-km/Strecken-km.a betrüge die Zinsvorbelastung schon 15 Dpf/Pers. km. Ein hohes Verkehrsaufkommen ist also entscheidend für die Rentabilität des Transrapid.

In China mit seiner sehr hohen Bevölkerungsdichte dürfte die Rentabilität des Transrapid sicher gegeben sein. Auf der 31,5 km langen Strecke von Schanghai bis zum Flughafen Pudong, deren Bauausführung nun unterschrieben ist, rechnet man mit 60 bis 80 Mio. Fahrgästen pro Jahr. Damit würden die Kapitalkosten bei 4.4 Mrd. DM Investitionen auf 1,7 bis 2,3 Dpf/Person und km kommen. Auch für die Strecke vom Flughafen Peking in die Stadt (Nähe deutsche Botschaft) von etwa 26 km Länge wird der Einsatz des Transrapid anvisiert.

Aus der Tagespresse (z.B. „Die Welt“ vom 16.08.2001) wurde bekannt, dass in China inzwischen auch ein eigenes Magnetbahn-System entwickelt wurde. Doch schon auf der MAGLEV 2000 in

Rio de Janeiro wurde im Rahmen eines Tagungsbeitrages aus China eine Modell-Magnetschwebbahn vorgeführt, die auf YBaCuO-Supraleitern im Fahrzeug und auf Permanentmagneten in der Spur basierte [10]. In der Presse wurde jedoch nicht berichtet, auf welchem System die chinesische Entwicklung beruht. Es wurde lediglich berichtet, dass das entwickelte Schwebesystem nur ca. 80 km/h schnell sei. Dies lässt vermuten, dass es sich um ein Magnet-Schwebesystem handelt, das mit Supraleitern im Fahrzeug und Permanentmagneten bzw. Elektromagneten in der Trasse arbeitet (siehe Abb. 1 und Abb. 2). Denn nur bei einem solchen System ist es vertretbar, die Schwebefahrzeuge auch bei niedrigen Geschwindigkeiten zu betreiben, da für das Aufrechterhalten des Schwebeszustandes – im Gegensatz zum Transrapid – kaum Energie verbraucht wird, nur diejenige zum Kalthalten der Supraleiter im Schwebefahrzeug.

Auffallend war, dass auf der ICOTOM 11 in Xi'an dem Posterbeitrag aus dem Forschungszentrum Karlsruhe, der zugleich in den auf der Tagung verteilten

Proceedings enthalten war [33] und von Neutronen-Textur-Messungen an YBaCuO-Zylinderproben handelt, von chinesischer Seite äußerst reges Interesse entgegengebracht wurde. So war es dann auch nicht verwunderlich, dass 4 Jahre später auf der MAGLEV 2000 in Rio de Janeiro das oben genannte Modell einer Magnetschwebbahn mit YBaCuO-Supraleitern im Fahrzeug und Permanentmagneten auf der Spur vorgeführt wurde [10].

Inzwischen scheint auch die Deutsche Bahn AG entschlossen, den Transrapid sowohl in Bayern als auch in Nordrhein-Westfalen zu betreiben [34].

Diesen Transrapid (07) zeigt schließlich die Abb. 8 auf einer aufgeständerten Magnetbahntrasse, wie wir ihn in Zukunft vielleicht in München und auch im Ruhrgebiet sehen könnten.

## Literatur

- [1] P. Görnert, W. Gawalek, *Proceed. of the 14<sup>th</sup> Int. Conf. On Magnetically Levitated Systems (MAGLEV 95)*, Bremen, pp. 483-488 (1995)
- [2] G. Bogner, *10<sup>th</sup> Int. Conf. on Magnetically Levitated Systems (MAGLEV)*, Hamburg, pp. 381-390 (1988)
- [3] H. J. Bornemann, C. Urban, R. Zabka, H. Rietschel, P. de Rango, X. Chaud, P. Gautier-Picard, R. Turnier, *Applied Superconductivity, Vol. 1*, H.C. Freyhardt (ed.) DGM Informationsgesellschaft Verlag, pp. 277-283 (1993).
- [4] H. Weh, H. Pahl, H. Hupe, A. Steingröver, H. May, *Proceed. of the 14th Int. Conf. on Magnetically Levitated Systems*, Bremen, pp. 217-222 (1995)
- [5] L. Schultz, *Vortrag und Demonstration im Physikalischen Kolloquium der Universität Karlsruhe am 14. 01. 2000.*
- [6] L. Schmidt, M. Ullrich, W.F. Kuhs, *Textures and Microstructures, Vol. 33*, pp. 75-92 (1999).
- [7] P. Görnert, *Crystal Research and Technology 32*, pp. 7-33 (1997)

- [8] H. J. Bornemann, A. Tonoli, T. Ritter, C. Urban, O. Zaitsev, K. Weber, H. Rietschel, *Applied Superconductivity Conference 1994, Boston, USA, IEEE Transactions on Appl. Supercond., Vol. 5, pp. 618-621 (1995).*
- [9] V. Jung, H.-G. Brokmeier, *Crystal Research and Technology 35, pp. 321-328 (2000)*
- [10] W.M. Yang, L. Zhou, Feng Yong, P.X. Zhang, J.R. Wang, C.P. Zhang, Z.M. Yu, X.D. Tang, W. Wei, X.Z. Wu, *Proceedings of the MAGLEV 2000, 16th Int. Conf. on Magnetically Levitated Systems and Linear Drives, Rio de Janeiro, pp. 107-110 (2000)*
- [11] Karin Oberleiter, *Konstruktion einer supraleitenden Modellschwebbahn mit magnetischem Linearantrieb. Zulassungsarbeit für das Lehramt, Physikalisches Institut III der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg. Auch: <http://www.pit.physik.uni-tuebingen.de/Kleiner/Deutsch/Festkoerperphysik.html>*
- [12] R. Nicolsky, R. Stephan, R. Andrade Jr., A.C. Ferreira, *Proc. of the MAGLEV 2000 (ibid.) pp. 179-182 (2000)*
- [13] K. Vandenbrouke, R.J. Cruise, Ch.F. Landy, A. Zachas, M.D. McCulloch, G. Barnes, *Proc. of the MAGLEV 2000 (ibid.) pp. 177-178 (2000)*
- [14] V. Jung, *Internationales Verkehrswesen 44, S. 482-487 (1992).*
- [15] V. Jung, *Magnetisches Schweben, Springer-Verlag, Heidelberg, (1988)*
- [16] L. K. Edwards, *Transportation Engineering Journal ASCE Vol. 95, pp. 173-202 (1969)*
- [17] A. Cassat, M. Rosenmayr, N. Macabrey, M. Jufer, *Proc. of the MAGLEV 2000, (ibid.) pp. 119-130 (2000)*
- [18] P. Komarek, *Hochstromanwendung der Supraleitung, B.G. Teubner, Stuttgart 1995, S. 304-306.*
- [19] V. Jung, M. Adam, H.J. Bornemann, H.-G. Brokmeier, A. Kaiser, R. Schnieber, J. Thoms, *Textures and Microstructures, Vol. 33, pp. 93-100 (1999).*
- [20] R. Gross, *Interfaces in High-Tc Superconducting Systems, Springer-Verlag Heidelberg, pp. 176-209 (1993)*
- [21] G. Fuchs, G. Krabbes, *Physikalische Blätter 57 (2001) Nr. 5, S. 304-306*
- [22] J. K. Fremerey, *Permanentmagnetische Lager, Lehrgangsskriptum zum Thema Luftlagerungen, Technische Akademie Esslingen (2000)*
- [23] D. F. B. David, A. Ripper, J. A. Santisteban, R. N. Stephan, R. de Andrade Jr., R. Nicolsky, D. N. Gomes, *Proc. of the MAGLEV 2000, (ibid.) pp. 441-446 (2000)*
- [24] F. Werfel, U. Flögel-Delor, R. Rothfeld, D. Wippich, Th. Riedel, *in Proc. 7<sup>th</sup> Int. Sympos. Magnetic Bearings, ETH Zürich, 23-25 Aug. 2000, p. 601-606.*
- [25] S.O. Siems, H. May, E. Portabella, W.-R. Canders, *in Proc. 7<sup>th</sup> Int. Sympos. Magnetic Bearings, ETH Zürich, 23-25 Aug. 2000, p. 607-612.*
- [26] E. Portabella, R. Palka, H. May, W.-R. Canders, *in Proc. 7<sup>th</sup> Int. Sympos. Magnetic Bearings, ETH Zürich, 23-25 Aug. 2000, p. 625-630.*
- [27] M. Komori, N. Akinaga, H. Sahai, *in Proc. 7<sup>th</sup> Int. Sympos. Magnetic Bearings, ETH Zürich, 23-25 Aug. 2000, p. 613-618.*
- [28] H. Fukuyama, T. Takizawa, *in Proc. 7<sup>th</sup> Int. Sympos. Magnetic Bearings, ETH Zürich, 23-25 Aug. 2000, p. 619-624.*
- [29] Y. Zhang, K. Nonami, H. Higasa, *in Proc. 7<sup>th</sup> Int. Sympos. Magnetic Bearings, ETH Zürich, 23-25 Aug. 2000, p. 631-636.*
- [30] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, J. Akimitsu, *Nature 410, pp. 63-64 (2001)*
- [31] R. Breimeier, *Internationales Verkehrswesen 51, S. 568-572 (1999)*
- [32] G. Kratz, *ZEV + DET Glas. Ann. 123, S. 93-106 (1999)*
- [33] H. J. Bornemann, H.-G. Brokmeier, T. Burghardt, W. Hennig, V. Jung, U. Zink, *Textures of Materials, Proc. of the 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Textures of Materials, Vol 2, pp. 951-955, ICOTOM 11, Xi'an (1996).*
- [34] H. Mehdorn, *Die Zeit 30, S. 22 (2001).*

# Fortschritte bei der Erzeugung und Fokussierung intensiver, eigenfelddominierter gepulster Strahlen leichter Ionen

H. Bluhm, P. Hoppé, IHM

## Einleitung

Intensive gepulste Strahlen leichter Ionen sind vielversprechende Werkzeuge für die Erschließung neuer Gebiete der Grundlagenforschung und für die Entwicklung neuartiger technischer Anwendungen. Unter intensiven Ionenstrahlen verstehen wir hier solche mit Pulsströmen im Bereich von MA, Teilchenenergien von einigen MeV und Pulsdauern von einigen 10 ns. Mit leichten Ionen bezeichnet man in diesem Zusammenhang das Gebiet von Wasserstoff bis Kohlenstoff. Auf Grund ihrer geringen Reichweite in Materie

können mit Hilfe dieser Ionenstrahlen in sehr kurzen Zeiten beträchtliche Energien (MJ/g) in Festkörpermaterie deponiert und ein noch weitgehend unbekanntes Gebiet im Phasendiagramm der Materie erschlossen werden, das für unser Verständnis vom Aufbau der Planeten und Sterne, für die Röntgenlaserforschung und für die Energieerzeugung mittels Trägheitsfusion von grundlegender Bedeutung ist. Dabei interessieren vor allem die thermodynamischen, elektrophysikalischen und optischen Eigenschaften der so erzeugten Materiezustände. Intensive gepulste Strahlen leichter

Ionen können mit hohem Wirkungsgrad, mit hoher Pulsenergie und mit sehr geringen spezifischen Kosten erzeugt werden. Hierauf beruht ihre Attraktivität als Treiber für die Trägheitsfusion [1] und für die Erzeugung starker epithermischer Neutronenquellen für die Bor-Neutroneneinfangtherapie von Tumoren [2].

Das wesentliche Element für die Erzeugung intensiver Leichtionenstrahlen mit höchster Strahlleistungsdichte ist ein aus zwei Stufen – der Injektor- und der Nachbeschleunigungsdiode – bestehender Beschleuniger (Abb. 1).

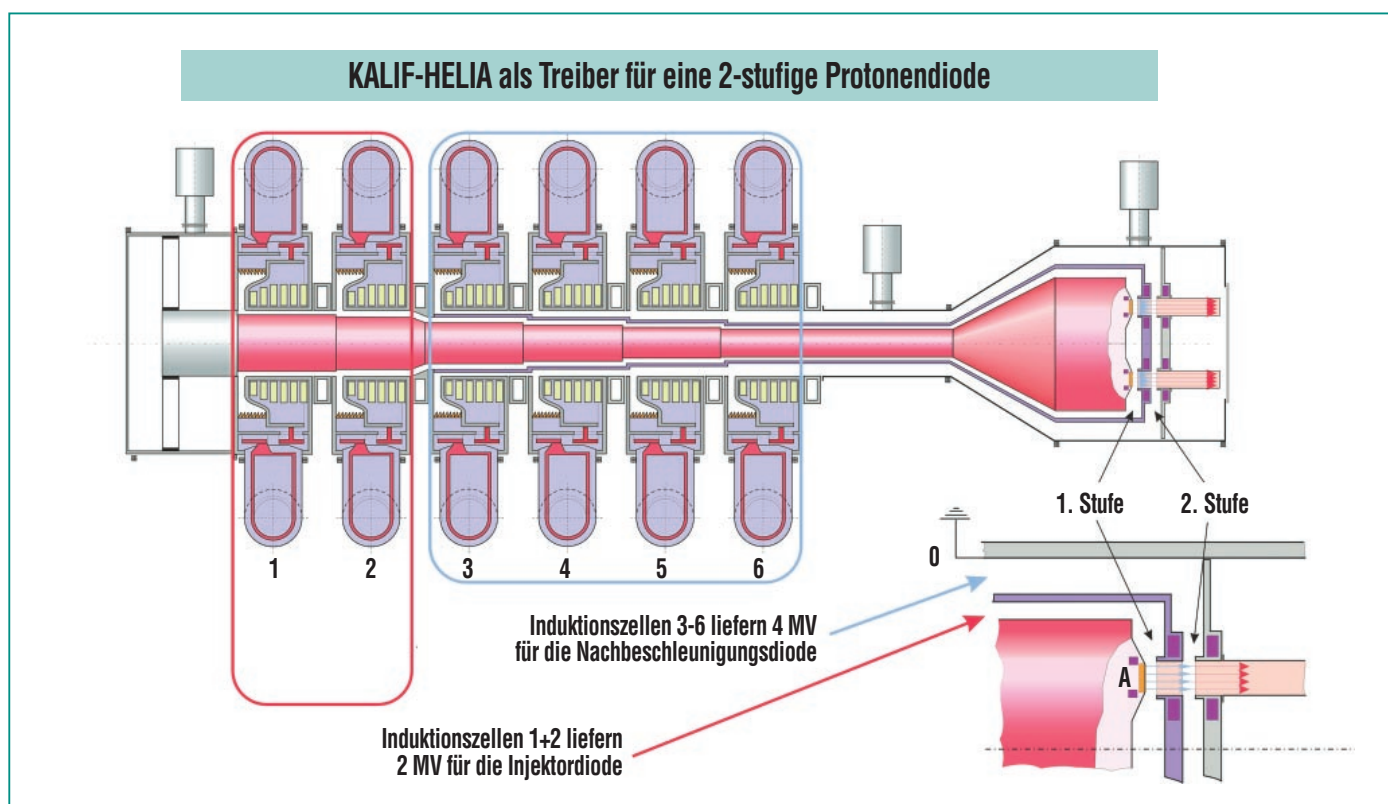


Abb. 1: Der 6-stufige Hochleistungsimpulsgenerator KALIF-HELIA (High Energy Linear Induction Adder) als Treiber einer zweistufigen Beschleunigeranordnung für leichte Ionen. Der Generator besteht aus 6 Induktionsezellen und zwei konzentrischen ineinander geschobenen selbstmagnetisch isolierten Spannungsaddierern. Jede der Induktionsezellen liefert eine Impulsspannung von 1 Megavolt. 2 Induktionsezellen werden zur Erzeugung der Beschleunigungsspannung in der Injektordiode und 4 zur Erzeugung der Beschleunigungsspannung in der Nachbeschleunigungsdiode zusammengeschaltet.

Beide Dioden müssen bei Leistungsdichten im Bereich von einigen  $10 \text{ GW/cm}^2$  und bei elektrischen Feldstärken von einigen  $\text{MV/cm}$  betrieben werden, um die gewünschte Strahlleistung von einigen  $\text{TW}$  mit praktikablen Emissionsflächen zu erreichen. Die Werte der beschleunigenden Feldstärke liegen damit um ca. zwei Größenordnungen über denen in konventionellen Beschleunigeranlagen. Mit der Erzeugung von gepulsten Ionenstrahlen bei Stromstärken im Megaampere-Bereich wird ein neues Gebiet der Beschleunigerphysik betreten, in dem die Strahleigenschaften wesentlich durch strom- und raumladungsbedingte Eigenfelder geprägt sind. Die Untersuchung der Bedingungen für die Erzeugung, Fokussierung und den Transport intensiver Ionenstrahlen mit hoher Strahlleistungsdichte ist daher selbst Gegenstand von Grundlagenforschung.

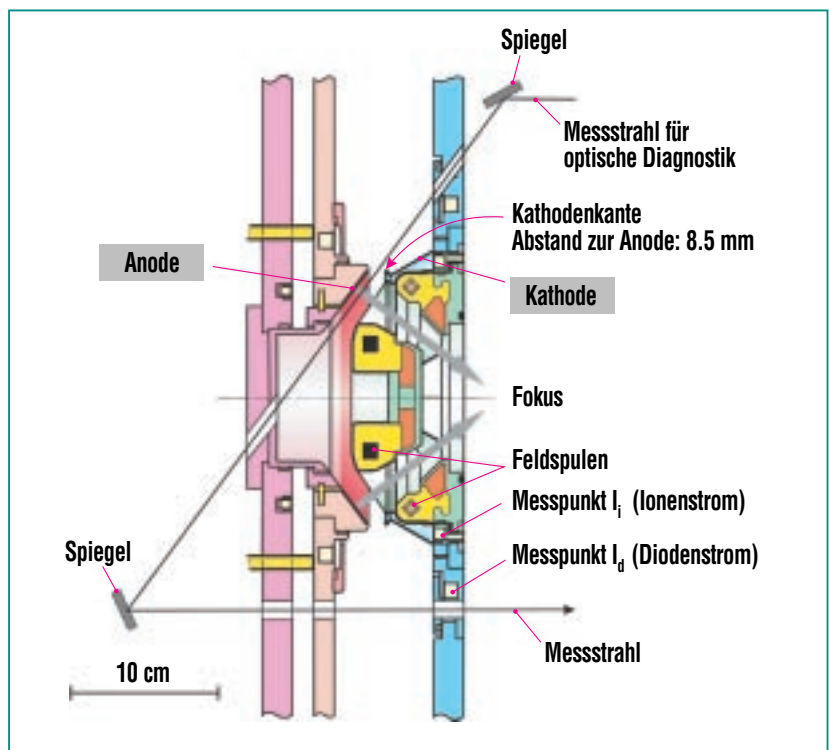
Zum Betrieb der Dioden wird ein Hochspannungsimpulsgenerator mit Leistungen im  $\text{TW}$ - und Spannungen im  $\text{MV}$ -Bereich benötigt. Alle Experimente, über die hier berichtet wird, wurden mit dem  $1,7\text{-MV}/800\text{-kA}$ -Impulsgenerator KALIF [3] („Karlsruhe Light Ion Facility“)\* durchgeführt.

Ziel der Untersuchungen, über die hier berichtet wird, war es, zu einem besseren Verständnis der physikalischen Vorgänge bei der Beschleunigung in der Injektordiode beizutragen. Bis zu einem gewissen Grad ist es möglich, die Entwicklung des Leichtionenbeschleunigers in drei voneinander

unabhängige Schritte aufzuspalten: In die Entwicklung der Ionenquelle, in die Untersuchung des Injektorspalts und in die Untersuchung des Nachbeschleunigungsspalts. Obwohl es natürlich gewisse Wechselwirkungen zwischen der Ionenquelle und den Beschleunigungsspalten gibt, können die Ergebnisse von Untersuchungen der physikalischen Prozesse im Beschleunigungsspalt doch weitgehend verallgemeinert und als unabhängig von der Art der Ionenquelle angesehen werden, da der dominierende Faktor die hohe Leistungsdichte im Spalt ist.

### Die fremdmagnetisch isolierte Injektordiode für Protonen

Ziel der Beschleunigung in der Injektordiode ist es, Strahlen mit möglichst hoher Güte zu erzeugen. Ein Maß für die Güte des Ionenstrahls ist seine Strahlleistungsdichte. Sie ist definiert als die im Strahl pro Flächen- und Raumwinkelement transportierte Energie. Die Strahlleistungsdichte ist der wichtigste Faktor für die im Fokus erreichbare Leistungsdichte. Alle hier beschriebenen Untersuchungen wurden an der in Abb. 2 dargestellten



**Abb. 2: Aufbau der an KALIF untersuchten fremdmagnetisch isolierten Injektordiode für Protonen: rot, die Anodenseite mit der ringförmigen Ionenquelle; blau, die Kathodenseite mit der Hohlkathode und der Emissionskante; gelb, die Anordnung der Feldspulen zur Erzeugung des isolierenden magnetischen Feldes.**

\* Die etwas missverständliche Namensgebung geht darauf zurück, dass der ursprünglich einzige Zweck des Generators, die Versorgung von Ionendioden mit der notwendigen Beschleunigungsspannung und Leistung war.



fremdmagnetisch isolierte Diode durchgeführt. Ihre Funktionsweise ist wie folgt:

Der Beschleunigungsspalt der Diode ist lediglich ca. 8 mm breit. Damit liegt, bei einer maximalen Spannung des verwendeten Pulsgenerators KALIF von 1,7 MV, die makroskopische Feldstärke bei ca. 200 MV/m, also weit oberhalb der 30 MV/m, bei der explosionsartige Elektronenfeldemission mit Plasmabildung an metallischen Oberflächen im Vakuum eintritt. Elektronen werden daher insbesondere vom Rand der Hohlkathode in den Spalt hinein beschleunigt. Damit sie die Anode nicht auf direktem Weg erreichen, wobei sie praktisch die gesamte vom Generator gelieferte Energie übernehmen würden, müssen sie durch ein extern erzeugtes magnetisches Feld daran gehindert werden, d.h. magnetisch isoliert werden. Dieses fremdmagnetische Feld von etwa 3T senkrecht zu den elektrischen Feldlinien wird mit Hilfe von zwei konzentrisch angeordneten Spulen erzeugt. Die vom Hohlkathodenrand emittierten Elektronen driften senkrecht zu den elektrischen und magnetischen Feldlinien. Da sie sich zugleich parallel zu den magnetischen Feldlinien ungehindert ausbreiten können, bilden sie einen elektronischen „Vorhang“, dessen kathodenseitiger Rand als virtuelle Kathode bezeichnet wird. Die Beschleunigung der Ionen erfolgt zwischen der Anodenoberfläche und dieser virtuellen Kathode. Als Protonenquelle diente in unserer fremdmagnetisch isolierten Diode ein dünner, mit Wasserstoff beladener Ti-

tan-Palladium Film auf der Anodenoberfläche, aus dem der Wasserstoff durch pulsartiges Heizen in wenigen ns freigesetzt und mit Hilfe einer Oberflächengleitladung in eine sehr homogene dünne Plasmaschicht übergeführt wurde [4]. Die Plasmaerzeugung muss natürlich unmittelbar vor dem Auftreten der Beschleunigungsspannung in der Diode erfolgen. Damit die Prozesse im Beschleunigungsspalt nicht zu stark von der Ionenquelle beeinflusst werden, darf das Plasma nicht zu schnell über die Magnetfeldlinien expandieren.

### Modellvorstellungen

Welches sind nun die Prozesse, die die Beschleunigung der Ionen im Spalt beeinflussen und die Eigenschaften der extrahierten Strahlen bestimmen? Simulationen vereinfachter Modelle der Injektordiode mit dreidimensionalen, voll elektromagnetischen Particle-in-cell-(PIC)-Codes haben ergeben, dass die Vorgänge im Beschleunigungsspalt durch die Dynamik der Elektronenschicht dominiert werden [5]. Anfänglich ist diese Elektronenschicht sehr dünn und drifft senkrecht zu den elektrischen und magnetischen Feldern in azimuthaler Richtung (Abb. 3). Aufgrund von Geschwindigkeitscherungen in dieser Schicht entwickelt sich jedoch sehr schnell die sogenannte „Diocroton“-Instabilität. Sie ist der Instabilität verwandt, die für die Entstehung von Wellen auf der Wasseroberfläche unter dem Einfluss von Wind verantwortlich ist. Der Einfluss dieser sehr hochfrequenten Instabilität auf die Strahllei-

stungsdichte der Ionenstrahlen ist noch relativ gering. Sie bewirkt jedoch eine Symmetriebrechung der Feldkonfiguration, da mit ihr fluktuierende Felder senkrecht zur Hauptbeschleunigungsrichtung verbunden sind und ermöglichen dadurch den Transport der Elektronen über die Magnetfeldlinien hinweg und damit die Ausbreitung der Elektronenschicht über den gesamten Beschleunigungsspalt. Sobald die Elektronenschicht die Anodenoberfläche erreicht, wird die Diocroton-Instabilität durch eine niederfrequente Instabilität abgelöst. Ihre Frequenz ist der Laufzeit der Ionen im Beschleunigungsspalt umgekehrt proportional. Aus diesem Grund hat diese niederfrequente Instabilität einen drastischen Effekt auf die Strahlleistungsdichte, denn die auf Grund der Instabilität auftretenden transversalen elektrischen Felder wirken während der gesamten Beschleunigung der Ionen im Injektorspalt in die gleiche Richtung.

Neben dieser unmittelbaren Auswirkung auf die Strahlqualität wird auch die Betriebsweise der Injektordiode beeinträchtigt. Da die Ionenstromdichte in Hochleistungsdioden im allgemeinen raumladungsbegrenzt ist, führt die mit der Elektronenschichtausbreitung verbundene Raumladungskompensation zu einer Erhöhung der Ionenstromdichte, die weit über dem Grenzwert im Vakuum, dem so genannten Child-Langmuir-Wert, liegt [6]. Dadurch wird auch das Kräftegleichgewicht im Diodenspalt gestört. Die erhöhte Ionenstromdichte erzeugt nämlich eine Kraft auf die virtuelle Kathode, die sie in Richtung Anode

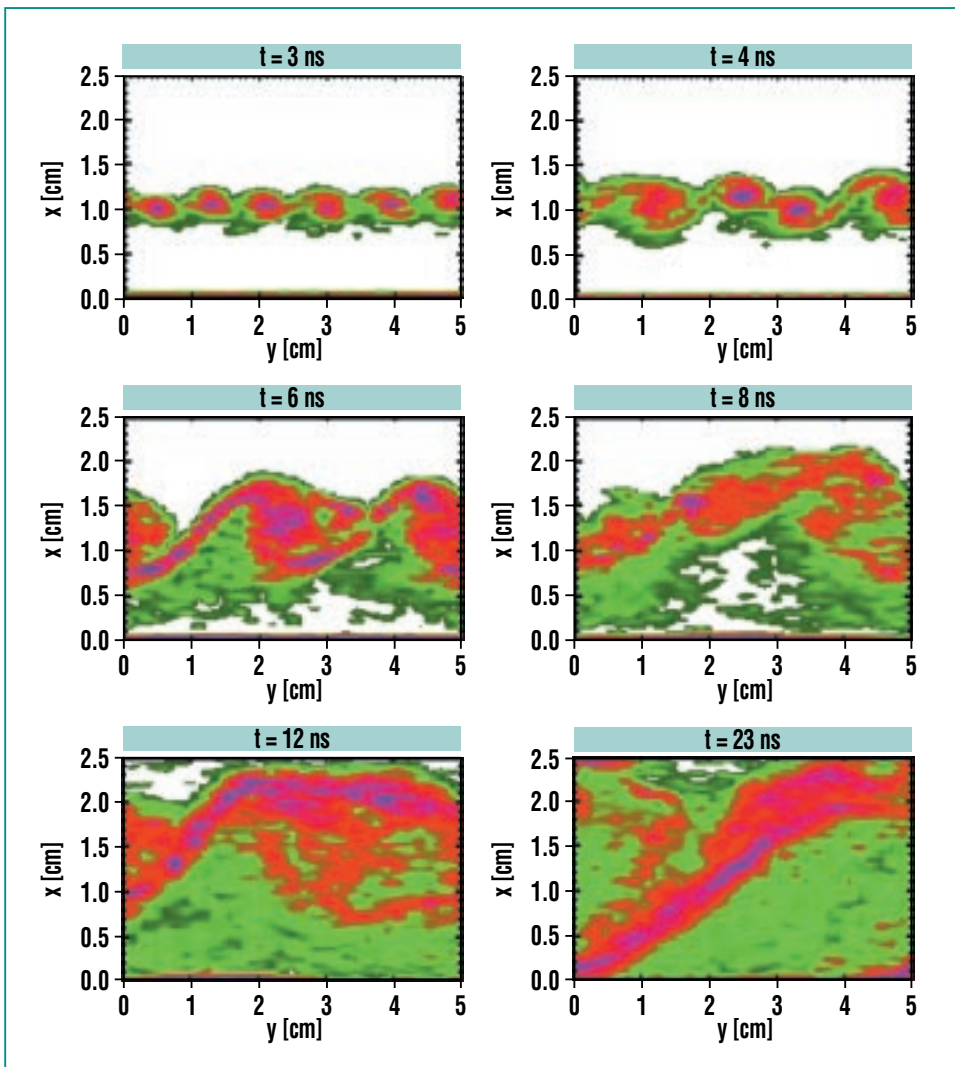
bewegt. Falls diese Bewegung ausreichend schnell erfolgt, bleibt der magnetische Fluss zwischen Anode und virtueller Kathode eingeschlossen, d.h. die magneti-

sche Feldstärke in der Diode wächst, bis durch den steigenden magnetischen Druck auf die virtuelle Kathode deren Bewegung gestoppt und eine neue Gleich-

gewichtslage erreicht wird. Wenn das anwachsende magnetische Feld jedoch in das Anodenplasma (die Ionenquelle) eindringt, weil dessen Leitfähigkeit zu gering ist, wird die Stärke des sich aufbauenden magnetischen Drucks geschwächt und die Gleichgewichtslage der virtuellen Kathode noch weiter in Richtung Anode verschoben. Alle Effekte besitzen Auswirkungen auf die Diodenimpedanz – dem Verhältnis von Beschleunigungsspannung und Diodenstrom – und beeinflussen dadurch indirekt auch die Qualität der erzeugten Ionenstrahlen: Da der Hochspannungsimpuls-generator, der die Beschleunigungsspannung liefert, eine endliche Impedanz besitzt (beim KALIF Pulsgenerator sind dies  $2,25 \Omega$ ), führt eine variierende Belastung, selbst bei ideal rechteckförmigen Impulsen, zu einer zeitlich veränderlichen Beschleunigungsspannung. Der Ionenstrahl ist damit nicht mehr monoenergetisch, und chromatische Aberrationen fokussierender Linsen werden ähnlich wie in der Optik zu Teilchenenergie abhängigen Fokusorten führen.

### Diagnostiken und experimentelle Ergebnisse

Die im vorigen Abschnitt beschriebenen Vorstellungen von den Vorgängen im Diodenspalt beruhten anfänglich nur auf analytischen Modellen und Simulationen mit dreidimensionalen, relativistischen, voll elektromagnetischen PIC-Codes. Aufgrund der teilweise drastischen Vereinfachungen in diesen Rechnungen



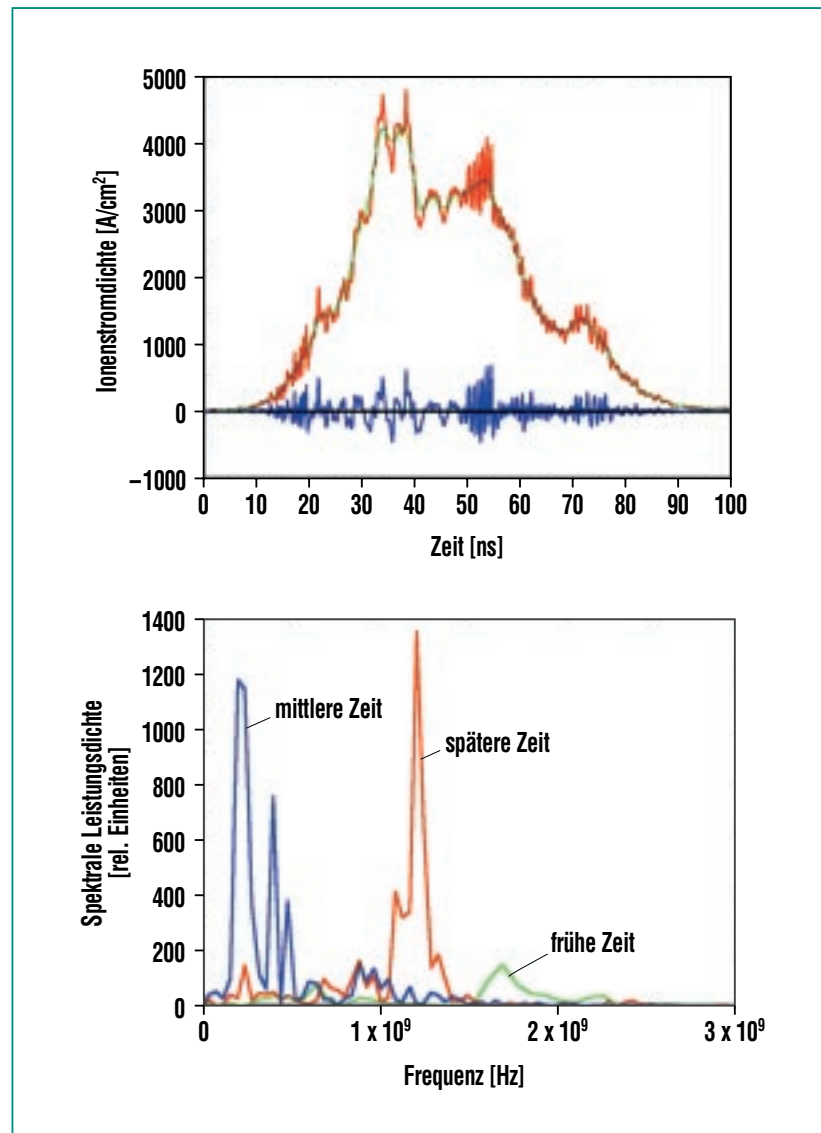
**Abb. 3:** Zeitliche Entwicklung der Elektronendichteverteilung im Beschleunigungsspalt einer fremdmagnetisch isolierten Injektordiode. Simulationsrechnung mit dem PIC-Code Quicksilver [5]. Die Intensität der Elektronendichte in der Darstellung verläuft von grün (niedrig) über rot nach violett (hoch). Die Kathode befindet sich bei 1,0 cm, die Anode bei 2,5 cm. Man erkennt den Übergang von der hochfrequenten Diocroton- ( $t = 3 \text{ ns}$ ) zur niederfrequenten Transitzeit- ( $t > 6 \text{ ns}$ )-Instabilität sowie die Ausbreitung der Elektronenraumladung über den gesamten Beschleunigungsspalt. Die Bilder sind Momentaufnahmen der Elektronendichte zu verschiedenen Zeiten seit Beginn des Impulses. (Für die Überlassung der Bilder danken wir T. Pointon, Sandia National Lab., Albuquerque, USA.)

erschien es uns jedoch notwendig, die Ergebnisse experimentell zu überprüfen. Zu diesem Zweck wurden neue diagnostische Methoden entwickelt, mit denen die Phänomene im Diodenspalt mit hoher räumlicher ( $< 1$  mm) und zeitlicher ( $< 1$  ns) Auflösung untersucht werden konnten.

Die beschriebenen Instabilitäten der Elektronenschicht sind durch ihr Frequenzspektrum und ihre Phasengeschwindigkeit charakterisiert. Wenn diese Instabilitäten auftreten, sollten sie sich durch starke Modulationen der Ionenstromdichte bemerkbar machen, die durch Fluktuationen der Elektronendichte vor der Anode mit der Frequenz der vorherrschenden Instabilitätsmode hervorgerufen werden und die sich mit ihrer Phasengeschwindigkeit in azimuthaler Richtung bewegen. Lokale Messungen der Ionenstromdichte sollten daher Auskunft über das Frequenzspektrum geben können. Durch Korrelation von Messungen an verschiedenen azimuthalen Positionen sollte sich die Phasengeschwindigkeit bestimmen lassen. Für diese Messungen wurden magnetisch isolierte Faraday-Becher an drei radialen und sechs azimuthalen Positionen einige Millimeter hinter der virtuellen Kathode verteilt. Zwei Messsignale wurden mit Hilfe extrem schneller Transientenrekorder (5 GHz Bandbreite) zur Bestimmung des Frequenzspektrums aufgezeichnet. Dabei wurde darauf geachtet, dass durch die Faraday-Becher selber und durch die Messkabel keine weitere Bandbreitenbegrenzung eingeführt wurde. Das Ergebnis einer Stromdichte-

messung mit dem 5-GHz-Messkanal ist in Abb. 4 dargestellt. Zu Beginn und am Ende des Impulses sind Perioden hochfrequenter Oszillationen erkennbar. Dazwischen liegt eine Periode mit Oszillationen geringerer Frequenz. Zur Auswertung des Frequenzspektrums wird das Signal numerisch geglättet, das geglättete Signal von dem unbehandelten

abgezogen und das Differenzsignal einer Fourier-Analyse unterworfen. Um die zeitliche Struktur des Frequenzspektrums sichtbar werden zu lassen, wird diese Analyse auf bestimmte Zeitabschnitte beschränkt. Wie in Abb. 4 gezeigt, beobachtet man zu Beginn des Impulses zwei dominierende Frequenzen bei 1,7 GHz und 2,2 GHz, während später ei-



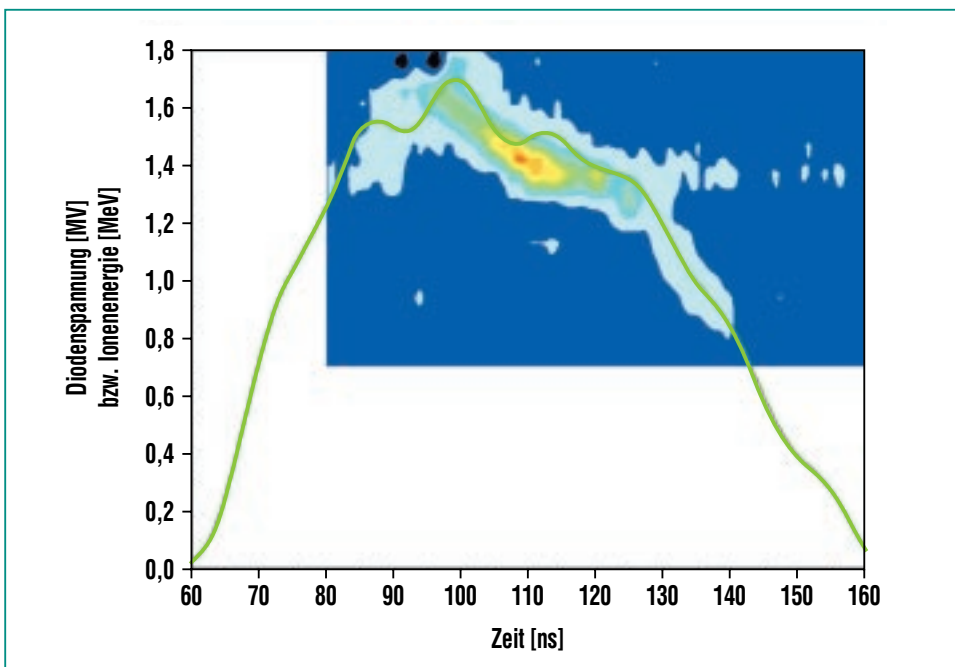
**Abb. 4:** Mit hoher zeitlicher Auflösung gemessene lokale Ionenstromdichtefluktuationen und das daraus abgeleitete Frequenzspektrum.

ne Frequenz bei 1,2 GHz vorherrschend ist. Dazwischen liegen Frequenzen von 0,96 GHz und von 0,2 GHz. Die allgemeine Struktur dieses Frequenzspektrums ist reproduzierbar, wobei die Lage der spektralen Leistungsdichten um  $\pm 150$  MHz variieren kann. Bei der maximalen Impulsspannung beträgt die Ionenstromdichte  $4 \text{ kA/cm}^2$ . Dies deutet darauf hin, dass der effektive Beschleunigungsspalt zu diesem Zeitpunkt gegenüber der anfänglichen geometrischen Spaltbreite von 8 mm stark reduziert ist: Nimmt man eine homogene Verteilung der Elektronenraumladung im Spalt an, so berechnet man eine Spaltbreite von lediglich 4 mm. Die dazu gehörige Ionen transitzeit liegt dann bei un-

gefähr 0,7 ns. Wir können daher die in der zweiten Hälfte des Impulses dominierende Frequenz von 1,2 GHz mit der Transitzeit-Instabilität in Verbindung bringen. Die sehr niederfrequenten Oszillationen mit Perioden im Bereich von 4 bis 5 ns werden dagegen auf zyklische Elektronenverluste zurückgeführt, die ebenfalls in Code-Simulationen für sehr starke magnetische Isolationsfelder, wie sie bei unseren Experimenten vorlagen, beobachtet wurden. Zur Bestimmung der Phasengeschwindigkeit wurde das zeitlich verschobene Erscheinen herausragender Signalmuster in azimuthal gegeneinander versetzten Faraday-Bechern ausgewertet. Dabei ergaben sich Geschwindigkeiten zwischen  $1/10$  und  $1/20$

der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum, was mit den aus PIC-Code Simulationen ermittelten Phasengeschwindigkeiten für die Ionen transitzeit-Mode kompatibel ist.

Die mit den Instabilitäten verknüpften transversalen elektrischen Felder sollten auch zu einer Streuung der Ionenenergien führen. Abhängig von der Phase zwischen dem transversalen Feld und der Beschleunigung eines Ions durch das Hauptfeld sollten sowohl Teilchenenergien oberhalb als auch solche unterhalb der Diodenspannung auftreten. Um dies zu überprüfen wurde ein magnetischer Energieanalysator mit hoher Energie- und Zeitauflösung aufgebaut. Er bestand aus einer zylindrischen Permanentmagnetanordnung von 0,22 m Durchmesser und einer Feldstärke von 0,76 T. An seinem Ausgang wurden 16 PIN-Dioden mit je  $1 \text{ mm}^2$  Detektorfläche und ca. 1 ns Zeitauflösung verwendet. Um zu jedem Zeitpunkt über die gesamte Diode und damit über viele Phasen zu mitteln, wurde eine 300 nm dicke Goldfolie im Fokus der Diode eingesetzt und die daran Rutherford-gestreuten Ionen analysiert. Nach Korrektur der Flugzeiten ergab sich die in Abb. 5 dargestellte Verteilung. Zum Vergleich wurde hier auch die elektrisch gemessene Diodenspannung eingetragen. Man erkennt eine relativ symmetrische Verteilung von  $\pm 15\%$  um den Mittelwert. Obwohl noch andere Ursachen – z.B. Ladungsaustausch zwischen Atomen und Ionen im Anodenplasma während der Anfangsphase der Beschleunigung – denkbar sind, weist die symme-



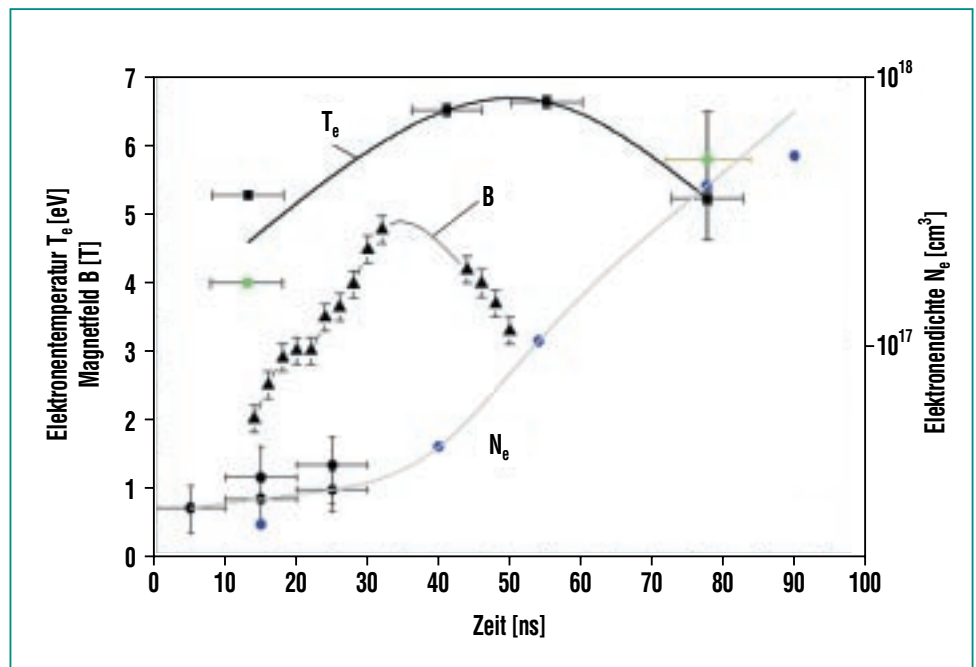
**Abb. 5:** Darstellung des Ionenenergiespektrums der Injektordiode als farbcodiertes Konturdiagramm. Die Daten wurden mit einem vierzehnkanaigen zeitauflösenden Magnetspektrometer gewonnen. In der Darstellung wächst die Intensität von blau nach rot an. Zum Vergleich ist auch die aus elektrischen Messungen abgeleitete, ca. 5-10 % genaue Beschleunigungsspannung dargestellt (grüne Kurve).

trische Verteilung der Ionenenergien doch eher auf die beschriebenen Instabilitäten als Verursacher hin.

Das in unserer Diode erzeugte Anodenplasma besaß eine zu geringe Leitfähigkeit, um das durch die zuvor erwähnte Bewegung der virtuellen Kathode im Diodenspalt anwachsende Magnetfeld dauerhaft auszuschließen. Die zeitliche Entwicklung des Magnetfelds kann daher durch Messung der Zeeman-Aufspaltung geeigneter Spektrallinien im Anodenplasma verfolgt werden. Da Kohlenstoff in geringer Menge als Verunreinigung in unserem Anodenplasma vorkam, wurden C III (464,74 nm) und C IV (580,13 nm) Linien für diese Messungen ausgewählt. Das verwendete Gitterspektrometer besaß eine spektrale Auflösung von bis zu 0,02 nm. Strahlung wurde aus einem Volumen mit  $0,2 \times 5 \text{ mm}^2$  Querschnitt vor der Anode empfangen. Als Detektor konnte entweder ein Array aus 750 Dioden mit einer Zeitauflösung von 10 ns oder ein Array aus 15 Photomultipliern mit 2 ns Zeitauflösung eingesetzt werden [7]. Zur Bestimmung des Magnetfeldes wurden Ausgleichskurven für die gemessenen Spektrallinienverteilungen bestimmt, die die Dopplerverbreiterung und die instrumentelle Verbreiterung der Zeeman-Komponenten berücksichtigen. Aus dem Fit erhält man neben dem Magnetfeld auch die Ionentemperatur. Abb. 6 zeigt die so gewonnene zeitliche Entwicklung des Magnetfelds im Anodenplasma. Man erkennt, dass das Magnetfeld, wie aufgrund der Elek-

tronendrift erwartet, zunächst stark anwächst. Überraschend ist, dass es anfänglich im Plasma kleiner als das extern erzeugte, isolierende Feld von 3 T ist. Wir führen dies auf die Art der Anodenplasmaerzeugung in unserer Diode zurück, bei der zunächst durch Entladung in einer dünnen Gasschicht ein sehr heißes Plasma mit guter Leitfähigkeit entsteht. Dieses heiße Plasma expandiert sehr rasch und der darin eingeschlossene magnetische Fluss bleibt erhalten, d.h. die Magnetfeldstärke nimmt ab. Nach dieser anfänglichen Expansion kann das Magnetfeld wieder in das Plasma eindringen und, wie aus Abb. 6 hervorgeht, wächst es deutlich über den ursprünglichen Wert des externen Feldes an.

Neben den bereits erwähnten Auswirkungen auf die Impedanzentwicklung der Diode besitzt das in das Anodenplasma eingedrungene Magnetfeld auch unmittelbare Auswirkungen auf die Fokussierbarkeit der erzeugten Ionenstrahlen. Damit die in einer zylindersymmetrischen Diode beschleunigten Ionen sich in einem gemeinsamen Fokus auf der Achse treffen können, muss der magnetische Nettofluss, den sie auf dem Weg dorthin durchquert haben, Null sein. In der in Abb. 2 dargestellten Diodengeometrie wechselt das Magnetfeld jedoch entlang der Flugbahn zum Fokus sein Vorzeichen. Die Ionen erfahren daher im ersten und zweiten Abschnitt ihrer Flugbahn einander entgegengesetzte azimuthale Ablenkungen. Nur wenn diese



**Abb. 6:** Aus Messungen der Zeeman-Aufspaltung von Kohlenstofflinien gewonnener zeitlicher Verlauf des Magnetfelds  $B$  im Anodenplasma. Zusätzlich sind der Verlauf der Elektronentemperatur und der Elektronendichte im Plasma dargestellt, die aus anderen spektroskopischen Messungen abgeleitet wurden.

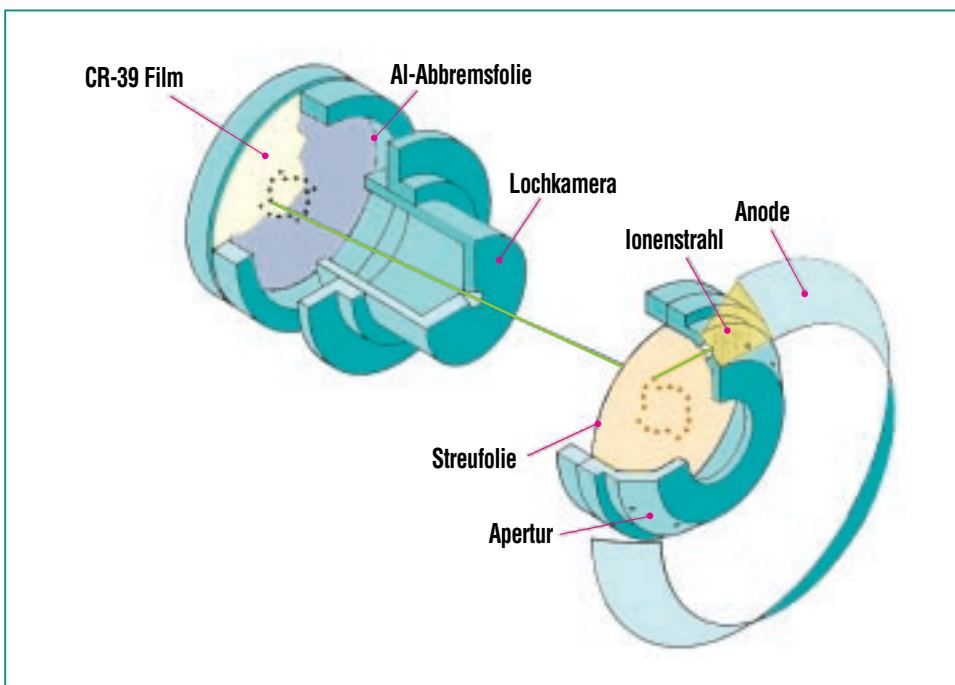
Ablenkungen, die dem jeweils durchlaufenen magnetischen Fluss proportional sind, einander exakt kompensieren, ist ein Schnittpunkt mit der Achse möglich. Dies ist offensichtlich nicht möglich, wenn ein Teil des magnetischen Flusses in die Anodenplasmaschicht eindringt. Physikalisch ausgedrückt bedeutet dies, dass die Ionen mit einem nicht verschwindenden kanonischen Drehimpuls geboren werden. Sie können sich dann nur bis zu einem minimalen Radius der Achse nähern, der vom Betrag des im Anodenplasma verloren gegangenen magnetischen Flusses, sowie von ihrer Masse und ihrer Energie abhängt.

Mit einer einfachen, aber sehr effektiven Diagnostik – einer soge-

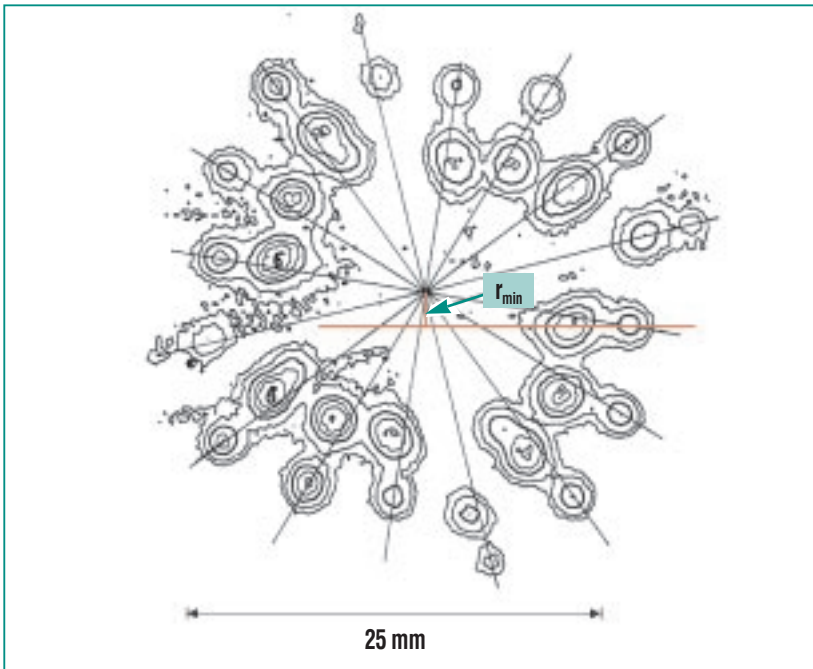
nannten Shadow-Box – lässt sich dieses Verhalten untersuchen (Abb. 7). Die Anordnung besteht aus einer Mehrloch-Apertur, mit der aus dem Gesamtstrahl einzelne Teilstrahlen selektiert werden. Das Muster, das sie auf einer in den Strahlengang positionierten dünnen Folie entwerfen, kann über die gestreuten Ionen mit Hilfe einer Lochkamera auf einem ionenempfindlichen Film (CR 39) abgebildet und durch Ätzen sichtbar gemacht werden. Jedes Ion hinterlässt eine Spur, die mit einem Bildanalyse-System ausgewertet werden kann. Werden zwei Streufolien mit ausreichendem Zwischenabstand in den Strahlengang gestellt, so entstehen zwei getrennte Bilder pro Strahl auf dem Film (Abb. 8).

Durch Verbindung der Mittenpositionen dieser Bilder lässt sich der minimale Radius bestimmen, bis zu dem sich die Strahlen der Achse nähern können. Hieraus kann wiederum der in das Anodenplasma eindiffundierte und deshalb für die magnetische Isolation verlorengegangene magnetische Fluss bestimmt werden. Wurde auch die Magnetfeldstärke im Plasma gemessen, so kann damit auch die Ausdehnung des Anodenplasmas in den Beschleunigungsspalt ermittelt werden. Für die Ionenquelle der fremdmagnetisch isolierten Diode ergaben sich so Ausdehnungen des Anodenplasmas zum Zeitpunkt des Leistungsmaximums von weniger als 0,5 mm.

Da die Elektronenschicht im Beschleunigungsspalt für das Betriebsverhalten der Injektordiode von zentraler Bedeutung ist, erschien auch eine unmittelbare Messung der zeitlichen und räumlichen Entwicklung der Elektronendichte im Beschleunigungsspalt notwendig. Herkömmliche interferometrische Verfahren zur Messung der Elektronenliniendichte gehören zwar zu den Standardverfahren in der Plasmaphysik, besitzen jedoch für die hier gestellte Aufgabe eine zu geringe Empfindlichkeit und eine unzureichende zeitliche Auflösung. Die Liniendichte der Elektronen in der Injektordiode liegt zu Beginn des Impulses bei  $< 10^{13}/\text{cm}^2$ , was einer relativen Verschiebung der Interferenzstreifen von  $< 10^{-4}$  entspricht. Diese Empfindlichkeit kann zwar mit speziellen, mechanisch stabilisierten Mach-Zehnder-Interferometern erreicht werden, deren



**Abb. 7: Shadow-box-Anordnung zur Analyse der Strahltrajektorien. Mit Hilfe einer Mehrlochapertur werden einzelne Strahlbündel selektiert und zur Reduktion der Teilchendichte an einer Metallfolie gestreut. Das Muster der Ionenstrahlbündel auf der Streufolie wird über die Sekundärteilchen mit einer Lochkamera auf dem ionenempfindlichen CR-39 Film abgebildet.**



**Abb. 8:** Mit einem Bildanalysesystem ausgewertetes Muster der Ionenstrahlbündel auf dem CR-39 Film. Die Muster geben die Intensitätsverteilung in Form einer Höhenliniendarstellung wieder. Bei dieser Messung wurden zwei axial gegeneinander versetzte Streufolien verwendet. Die Verbindung der Mittenposition von je zwei durch den gleichen Strahl hervorgerufenen Mustern erlaubt die Bestimmung des kleinsten Abstands, bis zu dem sich der Strahl der Achse nähern kann.

Verwendung im Umfeld eines Hochleistungsimpulsgenerators ist jedoch zu aufwändig und deshalb nicht zweckmäßig. Wir haben daher ein neuartiges, robustes Dispersionsinterferometer entwickelt, das nicht nur die geforderte Empfindlichkeit besitzt, sondern auch ein zeitliches Auflösungsvermögen im Bereich von 1 ns [8]. Es basiert auf der Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex in einer Elektronenwolke. Der Kern des Interferometers beruht auf zwei zu beiden Seiten des Messobjektes angeordneten Kristallen mit nichtlinearen optischen Eigenschaften (Abb. 9). Ein Bruchteil des an-

kommenden infraroten Nd:YAG Laserstrahls wird im ersten Kristall frequenzverdoppelt. Die Fundamentalwelle und ihre zweite Harmonische durchqueren das Messobjekt auf dem gleichen Weg, erfahren jedoch aufgrund der Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex unterschiedliche Phasenverschiebungen. In dem zweiten Kristall wird ein Teil der Fundamentalwelle erneut frequenzverdoppelt, wobei die Phase erhalten bleibt, während die Harmonische den Kristall unverändert passiert. Die Fundamentalwelle wird anschließend eliminiert. Da die beiden Harmonischen mit zueinander senkrecht

stehenden Polarisationsvektoren erzeugt wurden, können sie noch nicht interferieren. Um die Empfindlichkeit der Anordnung zu steigern, werden beide Strahlen zuvor mit Hilfe eines strahlteilenden Polarisators in je zwei zueinander senkrechte Komponenten aufgeteilt, die zu komplementären Interferenzmustern führen und voneinander subtrahiert werden können. Das Differenzsignal ist dann durch den folgenden Ausdruck gegeben:

$$I_+ - I_- = 2(I_1 I_2)^{1/2} \cos(\phi_0 + \delta\phi)$$

$I_{1,2}$  sind hierbei die Intensitäten der beiden Harmonischen,  $\delta\phi$  die relative Phasenverschiebung durch das Objekt und  $\phi_0$  eine zusätzliche Phasenverschiebung, die so eingestellt werden kann, dass das Interferometer in seinem empfindlichsten Punkt arbeitet, d.h. bei  $\phi_0 = (m + 1/2)\pi$  wobei  $m$  eine beliebige ganze Zahl ist. Die Robustheit des Interferometers beruht darauf, dass beide Strahlen den gleichen Weg zurücklegen, und nicht wie in anderen Anordnungen in einen Objekt- und einen Referenzstrahl mit unterschiedlichen Wegen aufgespaltet werden. Störungen entlang dieses Weges betreffen beide Strahlen daher gleichermaßen und haben deshalb keinen Einfluss auf die Messung.

Ein Ergebnis der Elektronendichtemessung mit dem Interferometer ist in Abb. 10 zusammen mit der Beschleunigungsspannung und dem elektrisch gemessenen Ionenstrom dargestellt. Ein erheblicher Ionenstrom beginnt erst mit dem Erscheinen der Elektronenraumladung im gesamten

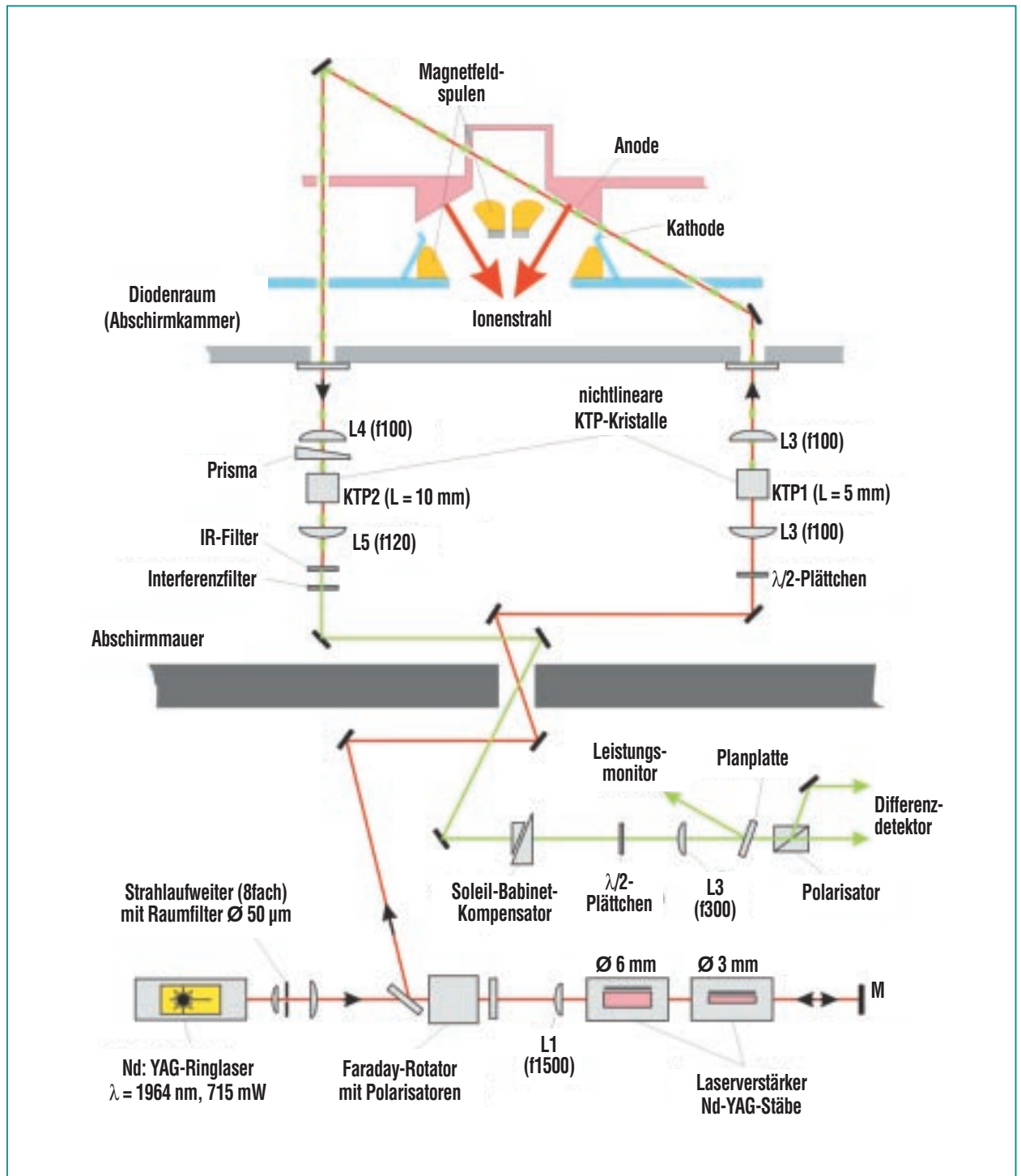


Abb. 9: Aufbau des Dispersionsinterferometers zur Messung der Elektronendichte im Beschleunigungsspalt der Injektordiode an KALIF. Ein Teil des primären Laserstrahls wird mit Hilfe eines KTP-Kristalls frequenzverdoppelt. Anschließend durchlaufen beide Strahlen das Objekt auf gleichem Weg. Danach wird der Primärstrahl mit einem zweiten KTP-Kristall erneut frequenzverdoppelt und mit dem ersten Sekundärstrahl zur Interferenz gebracht.



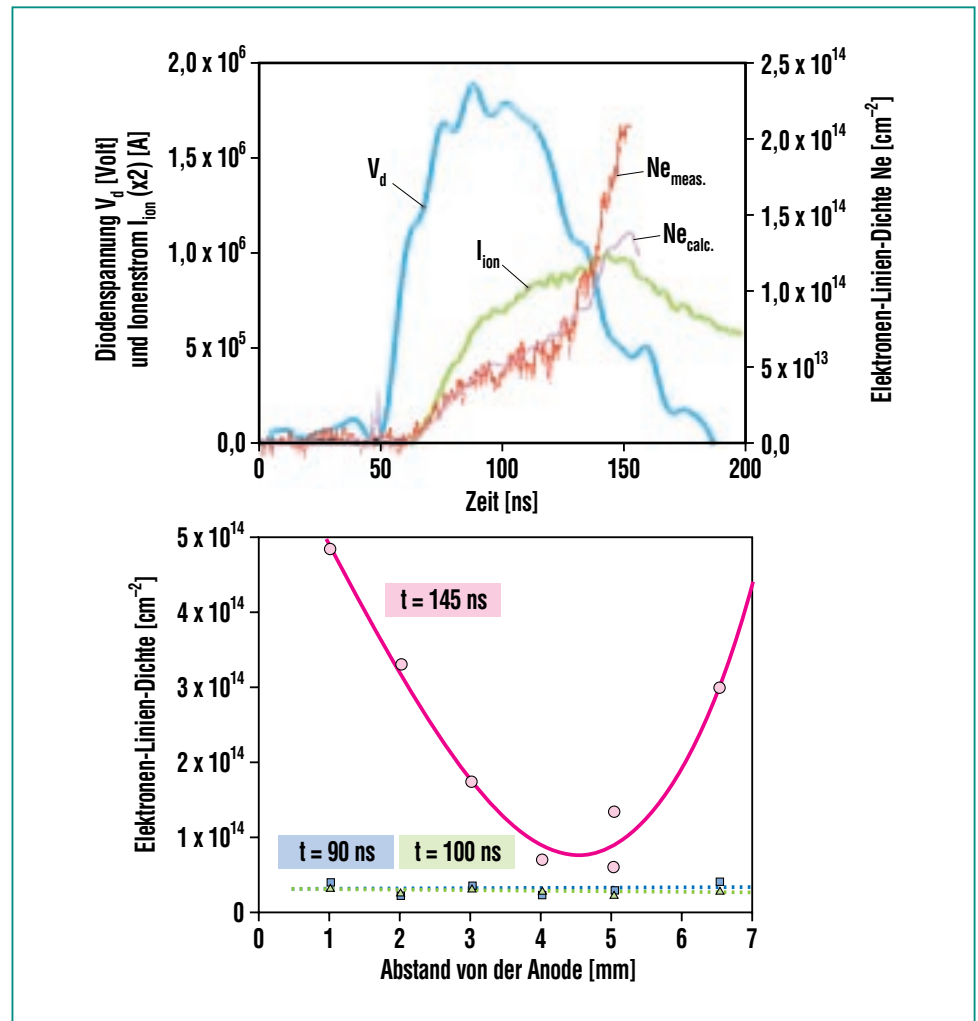
Diodenspalt. Innerhalb unserer zeitlichen Auflösung von 1 ns wächst die Elektronendichte simultan in allen Orten des Beschleunigungsspalts an und erreicht schließlich ein relativ stabiles Plateau für die Dauer von etwa 30 ns. Während dieser Zeit ist die Elektronendichte im Spalt homogen verteilt, wie im unteren Teil von Abb. 10 gezeigt. Dieses Ergebnis ist mit den Annahmen eines in der Literatur vorgeschlagenen analytischen Modells zur Beschreibung des quasistationären Verhaltens von Hochleistungsdioden kompatibel [6]. Im Rahmen dieses Modells ist es möglich, die Entwicklung der Elektronendichte im Beschleunigungsspalt aus der gemessenen Beschleunigungsspannung und der gemessenen Ionenstromdichte zu berechnen. Wie aus Abb. 10 hervorgeht, ist die Übereinstimmung zwischen der so berechneten und der gemessenen Elektronendichte hervorragend. Abweichungen treten erst nach Überschreiten des Leistungsmaximums und der maximalen Beschleunigungsspannung auf. Zu diesem Zeitpunkt sind die Voraussetzungen des Modells jedoch nicht mehr erfüllt, insbesondere ist die Elektronendichteverteilung im Spalt nicht mehr homogen, da Plasma von den Elektrodenstrukturen in den Spalt hindiffundiert.

## Schlussfolgerungen

Durch detaillierte experimentelle Untersuchungen mit neuartigen diagnostischen Verfahren konnte ein sehr konsistentes Bild der physikalischen Vorgänge im Beschleunigungsspalt von Hochleistungsdioden gewonnen werden.

Die experimentellen Ergebnisse haben die aus analytischen und numerischen Modellrechnungen abgeleiteten Vorstellungen von der Funktionsweise einer Injektordiode weitgehend bestätigt.

Um die Güte der intensiven Ionenstrahlen noch weiter zu verbessern, muss demnach an erster Stelle die Entstehung der Ionenstrahltransitzeitinstabilität unterdrückt bzw. verzögert werden oder ihre Auswirkungen müssen abgeschwächt werden. Hierzu



**Abb. 10:** Oben: Gemessene zeitliche Entwicklung der Elektronendichte  $N_{e, meas}$  im Beschleunigungsspalt, 3 mm von der Anodenoberfläche entfernt. Die übrigen Kurven zeigen die elektrisch gemessene Diodenspannung sowie den Ionenstrom und die mit Hilfe eines analytischen Modells aus beiden abgeleitete Elektronendichte, die mit der Messung sehr gut übereinstimmt. Unten: Verlauf der Elektronendichte im Beschleunigungsspalt zu verschiedenen Zeiten im Impuls. Während die Elektronendichte anfänglich sehr homogen ist, wächst sie zu späteren Zeiten zu den Elektroden hin stark an, was auf die Expansion der Elektrodenplasmen zurückgeführt wird.

sind mehrere Schritte erforderlich:

1. Die Ergebnisse der PIC-Code-Simulationen, deren Bedeutung durch unsere Messungen eine starke Unterstützung gefunden haben, zeigen auch, dass eine ungleichmäßige Stromdichteverteilung entlang der Magnetfeldlinien in der Diode die Entstehung der Ionenmode stimuliert und ihre Anwachsrate erhöht [9]. Wegen der  $1/r$  Abhängigkeit des isolierenden Magnetfeldes bei serieller Verschaltung der Feldspulen in der zylindersymmetrischen Diode von Abb. 2 wächst dort die Ionenstromdichte mit dem Radius an. Durch getrennte Versorgung beider Spulen und Wahl unterschiedlicher Spulenströme oder Windungszahlen lässt sich jedoch

erreichen, dass das Feld und damit auch die Stromdichteverteilung vom Radius unabhängig werden. In der Tat konnte bei unseren Experimenten gezeigt werden, dass sich auf diese Weise eine starke Reduktion der Strahldivergenz erreichen lässt [10]. Abb. 11 zeigt die Muster, die Teilstrahlen nach Abbildung mit der oben beschriebenen Shadow-box-Anordnung (Abb. 7) auf einem ionenempfindlichen Film hinterlassen, links mit einer seriellen Spulenkonfiguration, rechts mit getrennt ansteuerbaren Spulen nach Trimmen des Magnetfelds. Die starke Verbesserung der Strahlqualität ist offensichtlich.

2. Generell sollte die Stromdichte in der Diode nicht wesentlich über den Child-Langmuirschen

Wert für raumladungsbegrenzten Stromfluss im Vakuum anwachsen ( $j < 4j_{CL}$ ). PIC-Code-Simulationen haben gezeigt, dass die Anwachsrate der Ionenmode unter diesen Bedingungen gering ist. Eine Begrenzung der Stromdichte reduziert auch alle mit dem diamagnetischen Feld der Elektronendrift verbundenen Effekte.

3. Eine erhebliche Steigerung der Strahlleistungsdichte wird von einer zweistufigen Beschleunigeranordnung erwartet. Diese Erwartung basiert auf der Beobachtung, dass die Frequenz der schädlichen Ionenmode von der Ionen transitzeit abhängt, die natürlich für beide Stufen sehr verschieden ist. Daher können die Effekte dieser Instabilität sich nicht

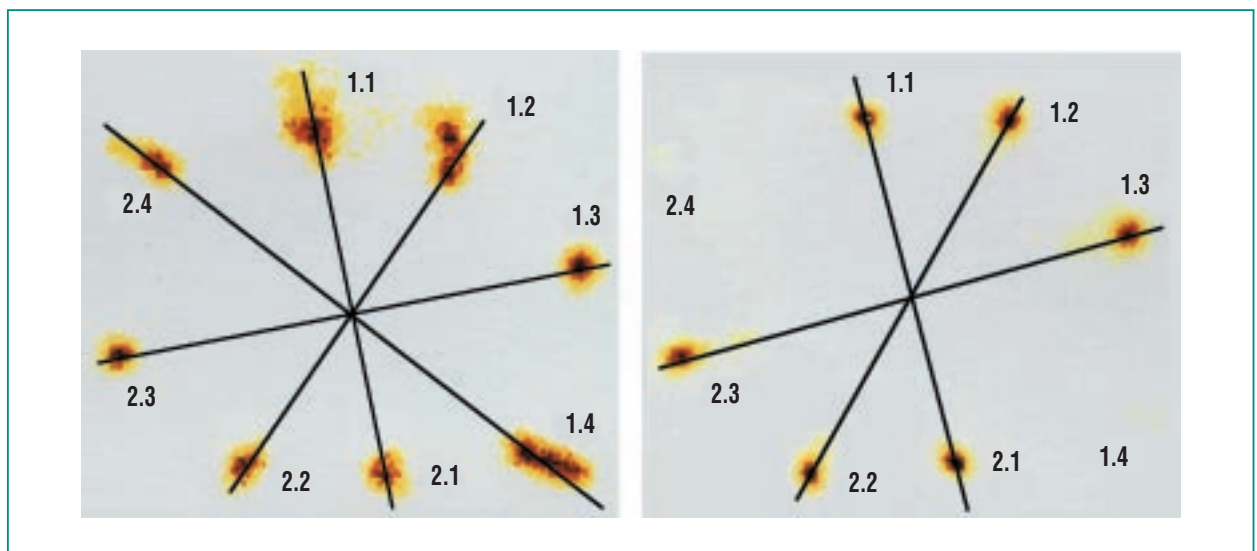


Abb. 11: Shadow-box-Aufnahmen zur qualitativen Bewertung der Strahlgüte der KALIF-Diode (Abb. 2): Links für eine Anordnung mit seriell verschalteten Feldspulen, bei der die Magnetfeldstärke mit wachsendem Radius abnimmt, während die Ionenstromdichte zugleich zunimmt. Rechts für eine Anordnung mit getrennt versorgten Spulen, bei der die Feldverteilung homogener und die Stromdichteverteilung daher vom Radius unabhängiger wird. Die Abbildung demonstriert den bedeutenden Einfluss makroskopischer Inhomogenitäten in der Stromdichte auf die Strahldivergenz (Größe der Muster).

kohärent von Stufe zu Stufe aufsummieren. PIC-Code-Simulationen haben diese Erwartung bestätigt und gezeigt, dass bei ausreichend kleinen Stromdichten eine erhebliche Reduktion der Strahldivergenz durch die Nachbeschleunigung erreicht werden kann. Es erscheint jedoch unwahrscheinlich, dass mehr als zwei Beschleunigungsstufen in dem beschriebenen Konzept realisiert werden können, da die Komplexität des Systems wegen der erforderlichen Strahlneutralisation zwischen den Stufen schnell anwächst.

Die zweistufige Beschleunigung ermöglicht auch die Realisierung höherer Ionenenergien und dadurch die Verwendung von Ionen mit größeren Massen als Wasserstoff. Dies hätte den Vorteil, dass die Wirkung selbst- oder fremderzeugter magnetischer Felder auf die Strahltrajektorien erheblich verringert werden würde. Dadurch würden sich Effekte, wie das oben beschriebene Nichtverschwinden des kanonischen Drehimpulses oder die Streuung der Ionenenergien, weniger stark auf die im Fokus erreichbare Leistungsdichte auswirken. Der erwartete stabilere Betrieb des zweistufigen Beschleunigers böte auch die Möglichkeit, das Potential von Strahlbunching zu nutzen. Hierunter versteht man die Versorgung der Diode mit einer rampenförmigen Beschleunigungsspannung, so dass die zuerst erzeugten Ionen am Ort des Fokus von den später erzeugten eingeholt werden, wodurch ebenfalls die Leistungsdichte im Fokus erhöht wird.

Weltweit gibt es bisher nur sehr wenige Experimente zur zweistufigen Beschleunigung, die an Anlagen mit kleiner Leistung und kleiner Beschleunigungsspannung durchgeführt wurden und deshalb nur bedingt auf größere Anlagen übertragbar sind. Da die Feldstärken in der Nachbeschleunigungsstufe einer zweistufigen Hochleistungsendiode jedoch ähnlich sind wie in der Injektordiode, werden sich die hier gewonnenen Ergebnisse zum Teil übertragen lassen. Es gibt aber charakteristische Eigenschaften der Nachbeschleunigungsstufe, die einer gesonderten Untersuchung bedürfen. Ein Teil dieser Besonderheiten hängt mit der möglichen Ausbildung einer virtuellen Anode in der Nachbeschleunigungsstufe zusammen, die dann erwartet wird, wenn die Raumladung des injizierten Ionenstrahls ein Feld aufbauen kann, das dem beschleunigenden Feld in einem Teil dieser Stufe entgegengerichtet ist [11]. Die virtuelle Anode ist zum Teil erwünscht, da sie die Beschleunigung von Ionen aus Plasmarandschichten auf der Eingangsseite der Nachbeschleunigungsstufe unterdrücken kann. Andererseits tritt sie auch bei beliebig hohen Injektionsstromdichten nicht mehr auf, wenn die beschleunigende Feldstärke in dieser Stufe einen kritischen Wert überschreitet.

Um diese und andere Fragestellungen im Zusammenhang mit der zweistufigen Beschleunigung untersuchen zu können, wurde zwischen 1997 und 2000 der im zivilen Bereich weltweit leistungsstärkste elektrische Pulsgenera-

tor KALIF-HELIA aufgebaut und in Betrieb genommen. Dieser Hochenergie-Induktionsaddierer [12] (high energy linear induction adder HELIA) hat eine elektrische Pulsleistung von 2,4 TW und eine Impulsspannung von 6 MV bei einer Impedanz von 15 Ohm [13]. Mit dem Pulsgenerator KALIF konnte mit der einstufigen Protodiode von Abb. 2 ein Rekord für die in einem Festkörper deponierten Leistungsdichte von 200 TW/g erreicht und Materie im Megabar- und Mega-Kelvin-Bereich erzeugt werden. Relativ konservative Extrapolationen für eine zweistufige, fremdmagnetisch isolierte Diode, angetrieben von dem Pulsgenerator KALIF-HELIA lassen eine Steigerung auf 1000 TW/g realistisch erscheinen. Damit ließe sich das Gebiet der strahlungsdominierten Materiezustände erreichen, in welchem Strahlung den wesentlichen Anteil in der Energiebilanz eines Systems darstellt. Strahlungstransport in heißen Plasmen bei Festkörperdichte, ein für die Astrophysik wichtiger Prozess, ließe sich so im Labor studieren.

## Literatur

- [1] J. P. VanDevender, H. Bluhm, „Light ion accelerators for ICF“ in *Nuclear Fusion by Inertial Confinement*, Eds. G. Velarde, Y. Ronen, J. M. Martinez-Val, CRC Press, Boca Raton, Florida., (1993) ch. 18
- [2] H. Bluhm, P. Hoppé, *Proc. 12th IEEE Int. Pulsed Power Conf., Monterey, USA, (1999)*, p. 502
- [3] H. Bluhm, P. Hoppé, H. Laqua, D. Rusch, *Proc. IEEE, 80 (1992)* 995
- [4] H. Laqua, H. Bluhm, L. Buth, P. Hoppé, *J. Appl. Phys., 77 (1995)* 5545
- [5] J. P. Quintenz, D. B. Seidel, M. L. Kiefer, T. D. Pointon, R. S. Coats, S. E. Rosenthal, T. A. Mehlhorn, M. P. Desjarlais, N. A. Krall, *Laser and Particle Beams, 12 (1994)* 283
- [6] M. P. Desjarlais, *Phys. Fluids B, 1 (1989)* 1709
- [7] S. J. Yoo, *Spektroskopische Messungen im Anodenplasma einer fremdmagnetisch isolierten Hochleistungs-Ionendiode, Dissertation, Universität Karlsruhe (1997)*, FZKA 5976
- [8] V. Licht, H. Bluhm, *Rev. of Sci. Instrum. 71 (2000)* 2710
- [9] M. P. Desjarlais, R. S. Coats, T. R. Lockner, T. D. Pointon, D. J. Johnson, S. A. Slutz, R. W. Lemke, M. E. Cuneo, T. A. Mehlhorn., *Proc. 11th Intl. Conf. on High Power Part. Beams, Prag, Tschechische Republik, (1996)*, p. 101
- [10] P. Hoppé, M. P. Desjarlais, H. Bluhm, L. Buth, D. Rusch, O. Stoltz, W. Vãth, *Proc. 12th Intl. Conf. on High Power Part. Beams, Haifa, Israel, (1998)*, p. 923
- [11] S. A. Slutz, J. W. Poukey, T. D. Pointon, *Phys. Plasmas 1 (1994)* 2072
- [12] J. J. Ramirez, D. E. Hasti, J. P. Corley, J. W. Poukey, K. R. Prestwich, R. D. Genuario, H. N. Nishimoto, J. J. Fockler, I. D. Smith, P. D'A Champney, K. E. Nielsen, L. G. Schlitt, P. W. Spence, *Proc. 5th IEEE Pulsed Power Conf., Arlington, USA, (1985)*, p. 143
- [13] P. Hoppé, H. Bluhm, K. Leber, D. Rusch, F. Singer, O. Stoltz, *Proc. 13th IEEE Int. Pulsed Power Conf., Las Vegas, USA, (2001)*, to be published

# Erlöschen brennender Partikel bei instabiler Verbrennung

B. Peters, IKET

## Einleitung

Ungenügender Ausbrand, also Erlöschen, von Partikeln tritt bei der Verbrennung von Festbrennstoffen, etwa in Flammen von staubförmigen Brennstoffen, häufig auf. Früher spielte der ungenügende Ausbrand keine große Rolle, da er nur marginale Verluste im Gesamtwärmewirkungsgrad hervorrief. In jüngster Zeit ist allerdings das Problem des ungenügenden Ausbrandes wieder aktuell geworden, weil die Produkte einer unvollständigen Verbrennung als Vorläufer einer nicht hinzunehmenden Schadstoffbildung gelten [1] und zu minderer Aschequalität führen. In der Vergangenheit wurde ungenügender Ausbrand oft auf Glühvorgänge [2], Sintern und die Wirkung von Ascheschichten [3] zurückgeführt.

Andere, auf numerischen Modellen aufbauende Untersuchungen legen den Schluss nahe, dass eine Änderung in der Partikelverbrennung wahrscheinlich zu ungenügendem Ausbrand führt. Ubhayakar [4] beschrieb anhand eines eindimensionalen Modells die quasi-stationäre Verbrennung eines kugelförmigen Partikels und bestimmte die Erlöschengrenzen in einem oxidierenden Gas im Ruhezustand. Aus seiner Untersuchung ging hervor, dass Brennen und Erlöschen von der Umgebungstemperatur, der Konzentration des Oxidationsmittels, Strahlungs- und Reaktionsbedingungen abhängen. Srinivas und Amundson [5] arbeiteten mit einem numerischen Modell auf der Grundlage einer instationären Masse- und Energiebilanz zu-

sammen mit einer probabilistischen Beziehung und sagten daraus die Entwicklung der Oberfläche für ein poröses kugelförmiges Partikel voraus. Sie kamen zu dem Schluss, dass eine kritische Partikelgröße, Umgebungstemperatur, Sauerstoffkonzentration in der Umgebung und Grenzschichtdicke existiert, oberhalb derer sich ein Partikel entzündet. In jüngster Zeit beobachteten Hurt u.a. [6] einen sofortigen Abfall der Partikeltemperatur bei der Verbrennung eines Brennstoffpartikels, das einer heißen Umgebung von 1600 K ausgesetzt war. Die Autoren untersuchten kugelförmige Partikel von Größen zwischen  $R = 0,55 \mu\text{m}$  und  $R = 0,60 \mu\text{m}$  in einem Rohrreaktor. Aufgrund der Verbrennung schrumpfte das Partikel, und nachdem eine kritische Größe erreicht war, trat ein schneller Temperaturabfall ein.

Wie von Wicke u.a. [7] und Essenhigh u.a. [8] schon dargelegt wurde, durchläuft ein Partikel je nach dem Verhältnis des inneren Massentransports zur Reaktionszeit, dem sogenannten Thiele-Modul, unterschiedliche Verbrennungsarten. Der Übergang von der Zone 2 (reagierender Kern) zur Zone 1 (schrumpfender Kern) geht mit einer schnellen Temperaturänderung einher. Dieses Verhalten wurde auch durch Untersuchungen von Essenhigh u.a. [9, 10] bestätigt. Die von diesen Autoren aufgrund einer instationären Masse- und Energiebilanz für ein kugelförmiges Partikel ermittelten Temperaturvorhersagen stimmten gut mit den Versuchen von Hurt u.a. [6] überein.

Wegen des nicht-linearen Verhaltens der Reaktionsgeschwindigkeit können bei der Verbrennung eines Partikels mehrere stationäre Zustände auftreten, darunter auch die sogenannte heiße und kalte Lösung. Im Verlauf einer Verbrennung kann ein stationärer Zustand instabil werden, und daran schließt sich eine Veränderung des Verbrennungsverhaltens an. In der vorliegenden Arbeit werden ergänzende Erklärungen dieses Phänomens auf der Grundlage einer linearen Stabilitätsanalyse dargestellt. Eine globale Bilanz von Wärmefreiset-

A	Oberfläche
$c_p$	spezifische Wärmekapazität
$c_r$	reaktionsfreudige Partikelart
D	Diffusionskoeffizient
$E_a$	Aktivierungsenergie
$H_m$	Reaktionsenthalpie
k	präexponentieller Faktor
$Q_{\text{Verlust}}$	Wärmeverlust
$Q_{\text{Abgabe}}$	Wärmeabgabe
r	unabhängige Variable
R	Radius
$R_g$	Gaskonstante
t	Zeit
T	Temperatur
$T_\infty$	Umgebungstemperatur
$T_w$	Wandtemperatur
V	Volumen

## Griechische Symbole

$\alpha$	Wärmeübergangszahl
$\beta$	Massenübergangszahl
$\rho$	Dichte
$\lambda$	Leitfähigkeit
$\sigma$	Boltzmann-Konstante

## Dimensionslose Größen

Nu	Nusselt-Zahl
Sh	Sherwood-Zahl
Th	Thiele-Modul

zung und -verlust eines Partikels zeigt, welche möglichen stationäre Zustände auftreten können: Ein weiterer Ansatz zieht außerdem die Temperatur- und Konzentrationsverteilung innerhalb der Partikel in Betracht.

### Die Theorie des wärmebedingten Erlöschens

Obwohl Semenow [11, 12] seine Theorie für die Wärmeexplosion von Gasen in Behältern entwickelt hat, lassen sich ihre Grundzüge auch auf den Abbrand und das Erlöschen von Partikeln anwenden. Wenn ein brennbares Partikel in eine heiße oxidierende Umgebung gebracht wird, lässt sich die Wärmefreisetzungsgeschwindigkeit unter der Voraussetzung einer Arrhenius-Reaktion nullter Ordnung ohne irgendwelche Begrenzungen des Massenübergangs, ähnlich wie in

einem gut gerührten Reaktionsgefäß, folgendermaßen beschreiben:

$$Q_{\text{rel}} = V H_m k e^{\frac{-E_a}{R_g T}} \quad (1)$$

Die Geschwindigkeit des Wärmeverlusts aufgrund des Wärmeübergangs in die Gasphase und der Abstrahlung an die Wände beträgt

$$Q_{\text{loss}} = \alpha A (T - T_\infty) + \varepsilon \sigma A (T^4 - T_w^4) \quad (2)$$

Hierbei bezeichnen  $V$ ,  $A$ ,  $H_m$ ,  $E_a$ ,  $R_g$ ,  $\alpha$ ,  $\varepsilon$ ,  $\sigma$ ,  $T$ ,  $T_w$  und  $T_\infty$  das Volumen und die Oberfläche des Partikels, die Reaktionsenthalpie, die Aktivierungsenergie, die Gaskonstante, den Wärmeübergangskoeffizienten, das Emissionsvermögen, die Boltzmann-Konstante und die Temperatur des Partikels bzw. der Wand und die Umge-

bungstemperatur. Die Kinetik dieses Ablaufs wird durch eine globale, instationäre Energiebilanz folgender Form beschrieben:

$$\rho c_p V \frac{dT}{dt} = Q_{\text{rel}} - Q_{\text{loss}} \quad (3)$$

wobei  $\rho$  und  $c_p$  die Dichte und die spezifische Wärme des Partikels darstellen. Zur qualitativen Beschreibung des Vorgangs werden der Abbrand des Ausgangsmaterials und seine Auswirkung auf die Reaktionsgeschwindigkeit außer Acht gelassen. Der geforderte stationäre Zustand bedingt, dass Wärmeverlust und Wärmeproduktion gleich sind,  $Q_{\text{rel}} = Q_{\text{loss}}$ , und bestimmt gleichzeitig die stationären Temperaturwerte des Partikels. Für eine Platte ( $n = 1$ ), einen Zylinder ( $n = 2$ ) und eine Kugel ( $n = 3$ ) liefert diese Gleichung folgende Gleichung:

$$H_m k e^{\frac{-E_a}{R_g T}} = \frac{\alpha n}{R} (T - T_\infty) + \frac{\alpha n}{R} \varepsilon \sigma (T^4 - T_w^4) \quad (4)$$

wobei  $R$  eine repräsentative Dimension der Geometrie darstellt.

Abb. 1 zeigt eine qualitative graphische Darstellung der Wärmefreisetzungskurve und unterschiedliche Wärmeverluste in Abhängigkeit von der Temperatur.

Je nach den Wärmeübergangsbedingungen können verschiedene Werte für die stationäre Temperatur auftreten. Während die Kurven für den Wärmeverlust mit der Temperatur stetig ansteigen, zeigt die Kurve für die Wärmeentwicklung die übliche S-Form des Arrhenius-Gesetzes mit dem Umkehrpunkt bei der Temperatur

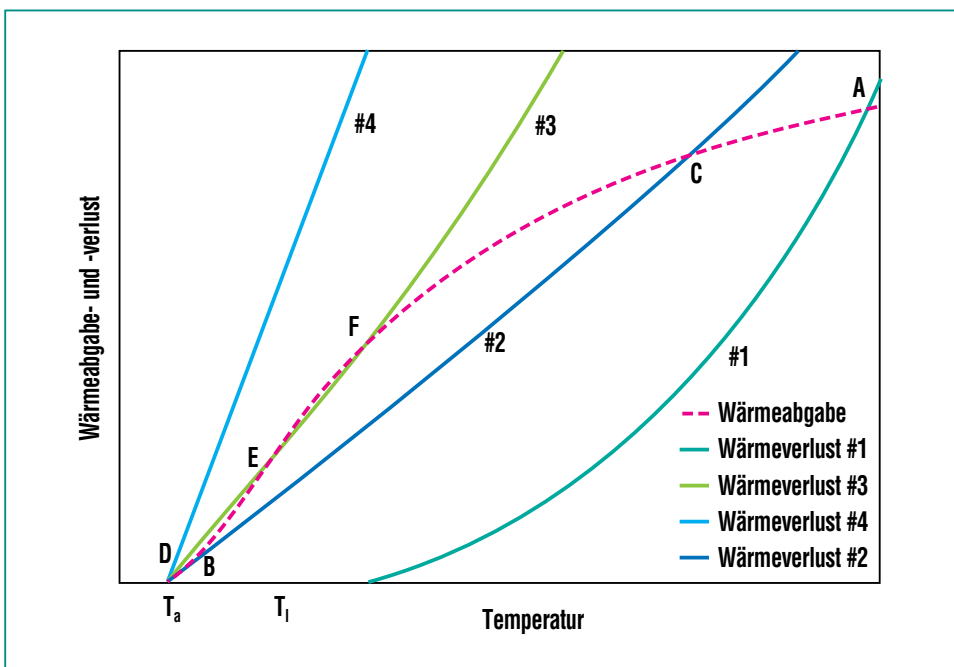


Abb. 1: Wärmeabgabe- und -verlustkurven.

$T_1 = E_a/2 R_g$ . Für eine Umgebungstemperatur  $T_a > T_1$  besteht am Punkt A, dem Schnittpunkt zwischen Wärmeabgabe- und Wärmeverlustkurve (# 1), die einzige stationäre Temperatur. Nimmt die Umgebungstemperatur ab, wandert der Schnittpunkt auf der Wärmeabgabekurve nach unten, bis die Temperatur  $T_a$  erreicht ist.

Im Fall  $T_a < T_1$  sind jedoch verschiedene Verbrennungsarten möglich. Bei einer sehr steilen Wärmeverlustlinie (# 4) tritt ein Schnittpunkt D mit der Wärmefreisetzung auf und bedeutet ein Gleichgewicht zwischen Verlust und Erzeugung. Somit herrscht bei niedrigen Reaktionsgeschwindigkeiten eine stabile stationäre Temperatur.

Für bestimmte Gradienten der Wärmeverlustkurve (# 3) entstehen drei Schnittpunkte (D, E, F) mit der Wärmefreisetzungskurve. Der Schnittpunkt E bei der Temperatur  $T_E$  entspricht einer instabilen Verbrennung. Bei einer Partikelaustragstemperatur unterhalb  $T_E$  kühlt sich das Partikel bis auf die Temperatur  $T_D$  ab, während es bei einer Ausgangstemperatur von mehr als  $T_E$  mit einer hohen Reaktionsgeschwindigkeit mit der Temperatur  $T_F$  abrennt. Ähnliche Verhältnisse gelten für den Schnittpunkt B, wo die Wärmeverlustlinie (# 2) eine Tangente an der Wärmeabgabekurve darstellt. Bei der Verbrennung eines Partikels nimmt die Steigung der Wärmeverlustlinie (# 2) aufgrund der abnehmenden Partikelgröße zu, so dass der Schnittpunkt B den Zustand einer instabilen Verbrennung darstellt. Somit bestimmt die Tangente an der

Wärmeverlustkurve den Partikelradius, bei dem Instabilität eintritt; hinzu kommt ein schneller Temperaturabfall auf einen Wert unter  $T_B$ , also das von Hurt u.a. [6] beobachtete Phänomen.

Zur Erklärung dieses Phänomens werden in der vorliegenden Untersuchung die kinetischen Daten für Illinois-Kohle zur Bestimmung der Tangente an die Wärmeverlustkurve verwendet, woraus sich dann der Partikelradius ergibt, bei dem Instabilität auftritt. Die Gastemperatur  $T_g = 1600$  K in den Versuchen von Hurt u.a. [6] liegt unter der Temperatur am Wendepunkt,  $T_1 = 10820$  K, so dass Instabilität auftreten kann. Bei einer Temperatur  $T = 1712$  K beschreibt die Wärmeverlustkurve eine Tangente an der Wärmeabgabekurve, so dass diese Bedingung zur Bestimmung des Partikelradius ausreicht, für den die Verbrennung instabil wird. Zusammen mit der Gleichsetzung von Wärmefreisetzung und -verlust ergibt sich der kritische Partikelradius dann durch folgende Abschätzung:

$$R_{\text{crit}} = \frac{3\alpha(T - T_\infty) + 3\epsilon\sigma(T^4 - T_w^4)}{H_m k e^{\frac{-E_a}{R_g T}}} \quad (5)$$

Gleichung 5 ergibt einen Wert  $R = 47 \mu\text{m}$ , bei dem Instabilität auftritt und die Ausbrandzeit wegen des Temperaturabfalls wesentlich länger wird. Essenhigh u.a. [8] haben die Temperatur und die Umwandlungsgeschwindigkeit eines Partikels unter denselben Verhältnissen vorausgesagt und einen kritischen Radius von

$R \approx 44 \mu\text{m}$  erhalten, der mit dem vorliegenden Wert gut übereinstimmt.

### Erlöschen bei ungleichmäßiger Temperaturverteilung

In der oben dargestellten Untersuchung wurden für ein Partikel gleichmäßige Temperatur- und Konzentrationsprofile vorausgesetzt, und daraus ergab sich eine globale Energiebilanz. Allerdings besteht immer ein Temperaturgradient, damit ein Wärmeübergang stattfinden kann; das gilt auch für kleine Partikel. Auf jeden Fall gilt es für größere Partikel, bei denen die Trägheitseffekte des Wärmetransports eine Ungleichmäßigkeit der Temperaturverteilung verstärken. Der Energieerhaltungssatz beschreibt die Entwicklung der Temperatur in Raum und Zeit für ein Partikel, während das Profil des Oxidationsmittels als einheitlich vorausgesetzt wird, also keinen Begrenzungen im Hinblick auf den Massenübergang unterliegt. Diese Annahme wird bei der Analyse im folgenden Kapitel außer Acht gelassen. Zur Kennzeichnung von Instabilitäten wird die Energiegleichung einer linearen Stabilitätsanalyse zusammen mit der Kollokationsmethode [13] unterzogen.

Die eindimensionale nicht-stationäre Energiegleichung für die Temperaturverteilung  $T$  eines kugelförmigen Partikels in dimensionslosen Koordinaten wird unter Berücksichtigung der Wärmeleitung und einer Arrhenius-Reaktion erster Ordnung folgendermaßen geschrieben:

$$\frac{\rho c_p R^2}{\lambda} \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{k H_m c_r R^2}{\lambda} e^{\frac{-E_a}{R_g T}} \quad (6)$$

wobei  $\rho$ ,  $c_p$ ,  $\lambda$  und  $R$  die Dichte, die Wärmekapazität, die Wärmeleitfähigkeit bzw. den Teilchenradius darstellen. Der reaktive Quellterm enthält  $k$ ,  $H_m$ ,  $c_r$ ,  $E_a$  und  $R_g$  als Präexponentialfaktor, Reaktionsenthalpie, Konzentration einer reaktionsfreudigen Spezies, Aktivierungsenergie bzw. Gaskonstante. Die thermischen Grenzbedingungen für konvektiven und Strahlungswärmeübergang werden in dimensionsloser Form folgendermaßen eingesetzt:

$$r=0: \frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad (7)$$

$$r=1: -\frac{\partial T}{\partial r} = Nu(T-T_\infty) + \frac{\varepsilon \sigma R}{\lambda} (T^4 - T_w^4) \quad (8)$$

wobei  $\varepsilon$ ,  $\sigma$ ,  $\lambda$ ,  $T_w$ ,  $T_\infty$ , und  $Nu$  die Emissionsfähigkeit, die Boltzmann-Konstante, die Leitfähigkeit, die Wandtemperatur, die Temperatur des umgebenden Gases und die Nusselt-Zahl,  $Nu = \alpha R / \lambda$ , darstellen.

In der vorliegenden Untersuchung wird das orthogonale Kollokationsverfahren [13] zur Diskretisierung der Erhaltungsgleichung verwandt. Das orthogonale Kollokationsverfahren bietet im Vergleich zu den Verfahren der Finiten Volumen bzw. der finiten

Elemente den Vorteil, diskontinuierliche Massen über die Diskretisierungsdomäne zu verteilen. Das führt zu einer funktionellen Auswertung an diskreten Punkten, während die anderen Methoden die Auswertung von Integralen fordern. Im Hinblick auf den nicht-linearen Reaktionsterm erleichtert das Kollokationsverfahren damit die mathematische Analyse erheblich. Um die Strahlungsrandbedingung zu diskretisieren, wird die Temperaturabhängigkeit um  $T_0$  in folgender Form linearisiert:

$$(T^4 - T_w^4) = (T_0^3 + T_0^2 T_w + T_0 T_w^2 + T_w^3) (T - T_w) = g_R (T - T_w) \quad (9)$$

so dass die Randbedingung bei  $r = 1$  folgendermaßen zu schreiben ist:

$$-\frac{\partial T}{\partial r} = Nu (T - T_\infty) + Nu' (T - T_w) \quad (10)$$

Wegen der ähnlich aussehenden Konvektions- und Strahlungsgrenzbedingung wird der Ausdruck

$$\frac{\varepsilon \sigma R}{\lambda} (\tau_o^3 - \tau_o^2 \tau_w^2 + \tau_w^3)$$

mit  $Nu'$  bezeichnet.

Im vorliegenden Zusammenhang wird das Kollokationsverfahren erster Ordnung für Kugelgeometrien angewandt, das zu analytischen Ausdrücken führt und das Verhalten ausreichend genau beschreibt. Wenn eine höhere Genauigkeit gefordert ist, kann eine

Kollokationsformel höherer Ordnung benutzt werden.

Eine lineare Störungsgleichung für die Temperatur  $T = T_0 + \varepsilon^\theta$ , wobei  $\theta = A \cdot e^{\Sigma t}$ , wird gewählt. Sie führt zu einer Bedingung für  $\Sigma$ , unter der ein stabiler und ein instabiler Bereich je nach dem Radius  $R$  des Partikels identifiziert werden. Unter der Bedingung  $\Sigma = 0$  kommt es zur thermischen Instabilität.

Dieses Ergebnis stimmt mit den Erkenntnissen von Essenhigh u.a. [9] gut überein, wonach sich die Temperaturverteilung, wenn die Partikelgröße auf einen kritischen Radius abgesunken ist, vom heißen Zweig in den kalten Zweig ändert und damit die Ausbrandzeit signifikant verlängert. Setzt man  $T_0 = 1700$  K, wo die Wärmeverlustkurve eine Tangente an der Wärmeabgabekurve darstellt, und nimmt man  $T_w = 1500$  K an, führt die oben erwähnte Analyse zu einem Wert  $R = 36,4$   $\mu\text{m}$ , was mit der Analyse im vorigen Kapitel recht gut übereinstimmt.

### Erlöschen bei ungleichmäßiger Temperatur- und Konzentrationsverteilung

Bei heterogener Verbrennung muss im allgemeinen außer dem Temperaturprofil auch eine Verteilung für ein oder mehrere Oxidatoren betrachtet werden. Zur Energieerhaltung kommt also die Masseerhaltung einschließlich eines Reaktionsquellterms. Das führt zu einem gekoppelten System von Differentialgleichungen, die demselben Verfahren zur Stabilitätsanalyse unterzogen wer-



den. Unter der Annahme einer Reaktion erster Ordnung für die Verbrennung eines porösen und kugelförmigen Partikels werden die Energiegleichung für den Feststoff, unter Vernachlässigung des Beitrags des Gasporenraums, und die Massenerhaltungsgleichung für die Gasphase der Poren folgendermaßen geschrieben:

#### Energie:

$$\frac{\rho c_p R^2}{\lambda} \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{k H_m c_r R^2}{\lambda} e^{-\frac{E_a}{R_g T}} \quad (11)$$

#### Masse:

$$\frac{R^2}{D} \frac{\partial c_r}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial c_r}{\partial r} \right) - \frac{k c_r R^2}{D} e^{-\frac{E_a}{R_g T}} \quad (12)$$

wobei  $c_r$  und  $D$  die Konzentration einer reaktionsfreudigen Spezies bzw. den Diffusionskoeffizienten darstellen.

Folgende Randbedingungen werden für Wärme- und Stoffübergang festgelegt:

#### Wärmeübergang:

$$r=0: \frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad (13)$$

$$r=1: -\frac{\partial T}{\partial r} = Nu(T - T_\infty) + \frac{\varepsilon \sigma R}{\lambda} (T^4 - T_w^4) \quad (14)$$

#### Stoffübergang:

$$r=0: \frac{\partial c_r}{\partial r} = 0 \quad (15)$$

$$r=1: -\frac{\partial c_r}{\partial r} = Sh(c_r - c_{r,\infty}) \quad (16)$$

wobei  $c_{r,\infty}$  und  $Sh$  die Umgebungskonzentration und die Sherwood-Zahl  $Sh = \beta^{R/D}$  darstellen. Durch Anwendung des Orthogonallokationsverfahrens bei Gleichung 11 und Gleichung 12 zusammen mit den Randbedingungen und durch Linearisierung des Reaktionsquellterms um die stationäre Lösung  $T_0$  und  $c_{r,0}$  ergibt sich wiederum ein System von Gleichungen, mit denen über die lineare Stabilitätsanalyse ein kritischer Radius für das Auftreten der Instabilität bestimmt werden kann.

Die Lösung liefert einen Wert  $R = 38.6 \mu\text{m}$ , der befriedigend mit den in der vorausgegangenen

Analyse erhaltenen Werten übereinstimmt.

Für technische Anwendungen lassen sich die obigen Ergebnisse als Beziehung zwischen einem kritischen Teilchenradius und Wärme/Stoffübergangsbedingungen graphisch so darstellen, dass damit die kritischen Zustände für ein Partikel bestimmt werden können. Diese Beziehung, in die die Massenübergangszahl als Parameter eingeht, wird für Illinois-Kohle in folgendem Bild als repräsentatives Beispiel dargestellt.

In Abb. 2 wird der Parameter einer konstanten Stoffübergangszahl in einen Löschbereich oberhalb der Kurve und einen Verbrennungsbereich unterhalb der Kurve unterteilt. Damit lässt sich bei gegebenen Nusselt- und Sherwood-Zahlen das Verhalten, ob Erlöschen oder Verbrennung vorliegt, leicht bestimmen.

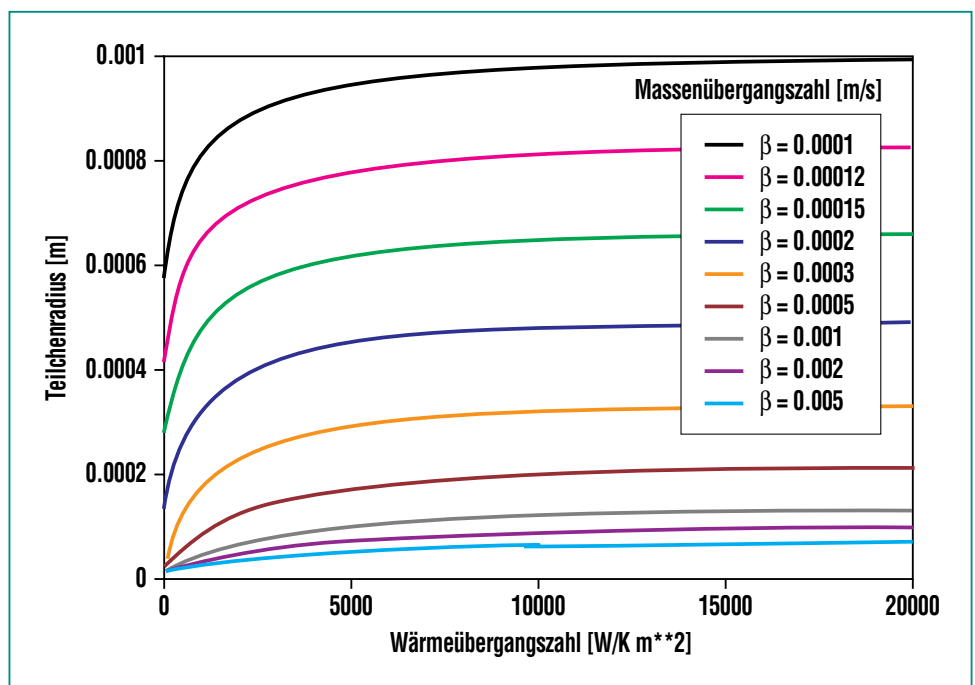


Abb. 2: Verbrennung und Erlöschen.

## Zusammenfassung

Die Stabilität des Verbrennungsvorgangs wurde bei kugelförmigen Partikeln untersucht. Auf der Grundlage der klassischen Theorie nach Semenov wurden die Bedingungen für eine Verschiebung von der heißen zur kalten Lösung bei einem reagierenden Partikel qualitativ und quantitativ abgeleitet. Unter Verbrennungsbedingungen erfährt ein Partikel Temperatur- und Konzentrationsprofile, die von der Verbrennung des Partikels und seiner Wärme-/Stoffübergangsgeschwindigkeit bestimmt werden. Ein System von Erhaltungsgleichungen dient zur Beschreibung der zeit- und raumabhängigen Tempera-

tur- und Konzentrationsentwicklung für ein kugelförmiges Partikel unter der Annahme einer Reaktion erster Ordnung. Eine lineare Stabilitätsanalyse zusammen mit dem Kollokationsverfahren führt zu von der Teilchengröße und den Wärme- und Massenübergangsbedingungen abhängigen Bedingungen, mit denen sich die Bereiche instabiler Verbrennung bestimmen lassen. Vor allem bei Partikelgrößen unterhalb eines kritischen Wertes schlägt die Verbrennung in niedrige Reaktionsgeschwindigkeiten um und führt damit zum Erlöschen des Partikels. Diese Bedingungen treten fast immer bei Partikeln auf, wenn sich deren Größe während der Verbrennung verrin-

gert und schließlich einen kritischen Wert erreicht, bei dem es zum Erlöschen kommt. Mit Hilfe dieses Ergebnisses können Ingenieure entweder die Größe von Teilchenemissionen bei rußender Verbrennung beurteilen oder Verbrennungsräume auslegen, bei denen ausreichend hohe Temperaturen und lange Verweilzeiten einen genügenden Ausbrand garantieren.

## Literatur

- [1] L. Stieglitz, H. Vogt, *Formation and decomposition of polychlorodibenzodioxins and -furans in municipal waste incineration*. KfK 4379, S. 1-16, 1988.
- [2] R. H. Essenhigh, *Chemistry of Coal Utilization: Second Supplementary Volume, chapter Fundamentals of Coal Combustion*, S. 1153-1312. John Wiley and Sons, New York, 1981.
- [3] R. H. Hurt, J. K. Sun, M. Lunden, *Combustion and Flame*, 113, 181-197, 1998.
- [4] S. K. Ubhayakar, *Combustion and Flame*, 26, 23-34, 1976.
- [5] B. Srinivas, N. R. Amundson, *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 59, 728-738, 1981.
- [6] R. H. Hurt, K. A. Davis, *25th Symp. (Int) on Comb.*, 1994.
- [7] E. Wicke, M. Z. Rossberg, *Elektrochem.*, 57, 641-645, 1953.
- [8] R. H. Essenhigh, H. E. Klimesh, D. Förtsch, *Energy and Fuels*, 13, 826-831, 1999.
- [9] D. Förtsch, R. H. Essenhigh, H. E. Klimesh, U. Schnell, K. R. G. Hein, *Modeling of time-dependent behavior of particle temperature and burnout during combustion of pulverized char particles*. Joint Meeting of the US Sections of The Combustion Institute, S. 1-4, 1999.
- [10] R. H. Essenhigh, H. E. Klimesh, D. Förtsch, *Energy and Fuels*, 1999.
- [11] K. K. Kuo, *Principles of Combustion*. John Wiley and Sons, New York, 1986.
- [12] Ya. B. Zeldovich, G. I. Barenblatt, V. B. Librovich, G. M. Makhviladze, *The Mathematical Theory of Combustion and Explosions*. Academy of Sciences of the USSR, 1985.
- [13] Bruce A. Finlayson. *The Method of Weighted Residuals and Variational Principles*. Academic Press New York, 1972

# Schritthaltende 3D-Kartierung zur mobilen Inspektion verfahrenstechnischer Anlagen

P. Kohlhepp, IAI; D. Fischer, FH Offenburg

## Problemstellung

Fahrzeuge, die unter Tage, in Fabrikanlagen, im Freien oder im Weltraum selbständig („autonom“) agieren, benötigen *dreidimensionale*, gleichwohl kompakte und für die Planung von Wegen und Aktionen nützliche Geometriemodelle. Ihre räumliche Wahrnehmung wird die heutiger Kanalroboter oder Reinigungsroboter bei weitem übersteigen. In diesem Beitrag geht es speziell um Serviceroboter, welche verfahrenstechnische Anlagen im Rahmen der zustandsabhängigen Instandhaltung mit Distanzsensoren von außen routinemäßig *inspizieren* sollen. Die Fahrzeuge sollen auf mehreren Ebenen der Anlage frei navigieren, um die Temperaturverteilung an isolierten Kesseln oder Öfen mit einer Wärmebildkamera zu messen, oder undichte Flansche oder Ventile mit der Elektronischen Nase zu erschnüffeln. 3D-Informationen sind mit nicht geometrischen Signalen wie Temperaturen und Gaskonzentrationen zu Aussagen wie *Hot Spot* oder *Leck* zu verknüpfen.

Gute Gründe sprechen dafür, dass die Fahrzeuge die Kartierung der Anlage, wie sie für ihre Aufgaben angemessen ist, selbst erledigen, statt ein extern und zu einem ganz anderen Zweck erstelltes CAD-Modell erst anzupassen. Zur Aufnahme eignen sich optische Sensoren wie Laserscanner, Stereokamera oder Infrarotkamera. Bei der Erkundung, ob autonom oder bedienergeführt, sind viele *Teilansichten* von unbekanntem oder unsicheren Positionen aus wie in

einem Puzzle lagerichtig zuzuordnen und redundanzfrei zusammensetzen: alle Teile sollen im Ganzen wiedererkannt, aber überlappende Teile nur einmal repräsentiert sein. Das Ziel lautet, zunächst den Grundzyklus *Zuordnen*→*Lokalisieren*→*Verschmelzen* für die Teilansichten zeitlich schritthaltend und trotz Messfehlern, Verdeckung und eingeschränkter Sichtbarkeit zuverlässig zu realisieren. Die Lagebeziehung zwischen der mit dem Fahrzeug verknüpften Teilansicht und einer zweiten Karte liefert die Fahrzeugposition. In dem Grundzyklus liegt der Schlüssel zur Lösung der meisten geometriebezogenen Probleme mobiler Systeme: Kartierung bei gleichzeitiger Selbstlokalisierung, Wegplanung, Inspektion und Objekterkennung. Der Artikel gibt im ersten Teil eine Übersicht über hierzu laufende Arbeiten am IAI und stellt im zweiten Teil die Zukunftsvision Mobile Inspektion vor.

## Repräsentation und Rekonstruktion

Erfolgsentscheidend für die Aktionen im „Puzzlespiel“ ist die Repräsentation der Teile wie des Ganzen. So ist eine *globale* Beschreibung der Geometrie eines Bauteils, etwa als Verteilung der Normalenvektoren, schwer handhabbar, wenn Teile des Objektes verdeckt oder nicht sichtbar sind, oder wenn eine solche Darstellung die Objekte nicht eindeutig charakterisiert. *Lokale* (oder *merkmalbasierte*) Modelle beschreiben dagegen explizit, wie ein Objekt sich aus einzelnen Merkmalen zusammensetzt. Sie

untergliedern sich in *Rastermodelle*, *geometrische* und *topologische* Modelle. Rastermodelle, z.B. Gitternetze oder Voxelmodelle, teilen den Gesamttraum in gleich große Zellen auf und ordnen ihnen einen diskreten Zustand „frei“ oder „belegt“, oder eine Wahrscheinlichkeit zu, durch Objekte belegt oder Aufenthaltsort des Fahrzeugs zu sein. Bei einer vorgegebenen Mindestauflösung des Raumes wächst ihr Aufwand proportional zum Volumen und unabhängig von der tatsächlichen Komplexität der Anlage. Dies ist bei drei Dimensionen nicht mehr tragbar. Hingegen bilden geometrische Modelle nur die real vorhandenen, miteinander verknüpften Elemente ab. Topologische Modelle ähneln den geometrischen, legen aber den Schwerpunkt mehr auf die qualitativen und funktionalen Zusammenhänge zwischen den Elementen als auf metrische Informationen. Die Elemente bilden die Knoten, und ihre Verknüpfungen die Kanten eines Graphen. Elemente wie Verknüpfungen tragen zusätzliche numerische oder symbolische Attribute, daher spricht man von *attributierten Graphen* [1].

Als Grundelemente kommen Punkte, Kanten, Oberflächenstücke oder Volumina in Frage. Zunehmende *Verdichtung* der Daten, wachsender Nutzwert für die Wiedererkennung und für die Planung von Aktionen durch ein Fahrzeug, aber auch wachsende Probleme gehen damit einher, die Elemente aus Sensordaten automatisch abzuleiten. Laser-Radar-Sensoren liefern durch punkt-, zeilen- oder flächenweise Abtas-

tung der Körperoberfläche ein 3D-Punktmodell.

Eine automatische *Segmentierung* kann daraus geometrisch sinnvolle *Oberflächenstücke* und *Flächenbeziehungen* (Relationen) generieren. Jedes Flä-

chenstück ist durch ein oder mehrere Polygone berandet. Sein Inneres wird durch eine Ebene oder quadratische Approximationsfläche angenähert und zusätzlich durch die Verteilung der Krümmungen charakterisiert. Schwerpunkt- und Richtungsvektor (ge-

mittelter Normalenvektor, der vom Material weg zeigt), Flächeninhalt und Ausdehnung sind weitere Attribute. Das Gewicht misst die Bedeutung der Fläche für die Teilansicht und hängt von Größe und Sichtbarkeit ab. Relationen kennzeichnen die Übergänge zwischen Flächenstücken, etwa als Unstetigkeiten des Abstands (Sprungkanten), der Richtungsvektoren (Schnittkanten) oder der Krümmungen. Zu den geometrischen Attributen kommen weitere hinzu: eine Fläche wird nach Vorgaben eines Bedieners einem Anlagenbauteil zugeordnet, erhält Vorschriften für die Inspektion und im Betrieb erhobene Inspektionsbefunde. Spezielle Flächen, zum Beispiel der Boden, dienen dem Fahrzeug zur Wegplanung (Abb. 1). Attributierte Oberflächenmodelle sind also kompakt, leicht erweiterbar und automatisch aus Sensordaten generierbar und eignen sich somit hervorragend als internes Weltmodell für ein Inspektionsfahrzeug.

Künstliche Landmarken (Beacons, Reflektoren [2]) können die Lokalisierung der Roboter und die Kartierung der Einsatzumgebung erleichtern. Sie erfordern aber eine aufwändige Präparierung der Anlage, ebenso wie im Gebäude installierte Kameranetze [3], welche die Fahrzeuge dirigieren. Satellitengestützte Navigationssysteme (GPS) gewährleisten in umbauten Fertigungsanlagen mit vielen Abschattungen keinen sicheren Empfang. Auch sei daran erinnert, dass der Einsatz von GPS eine Karte der Einsatzumgebung, welche Koordinaten mit Zielen verknüpft

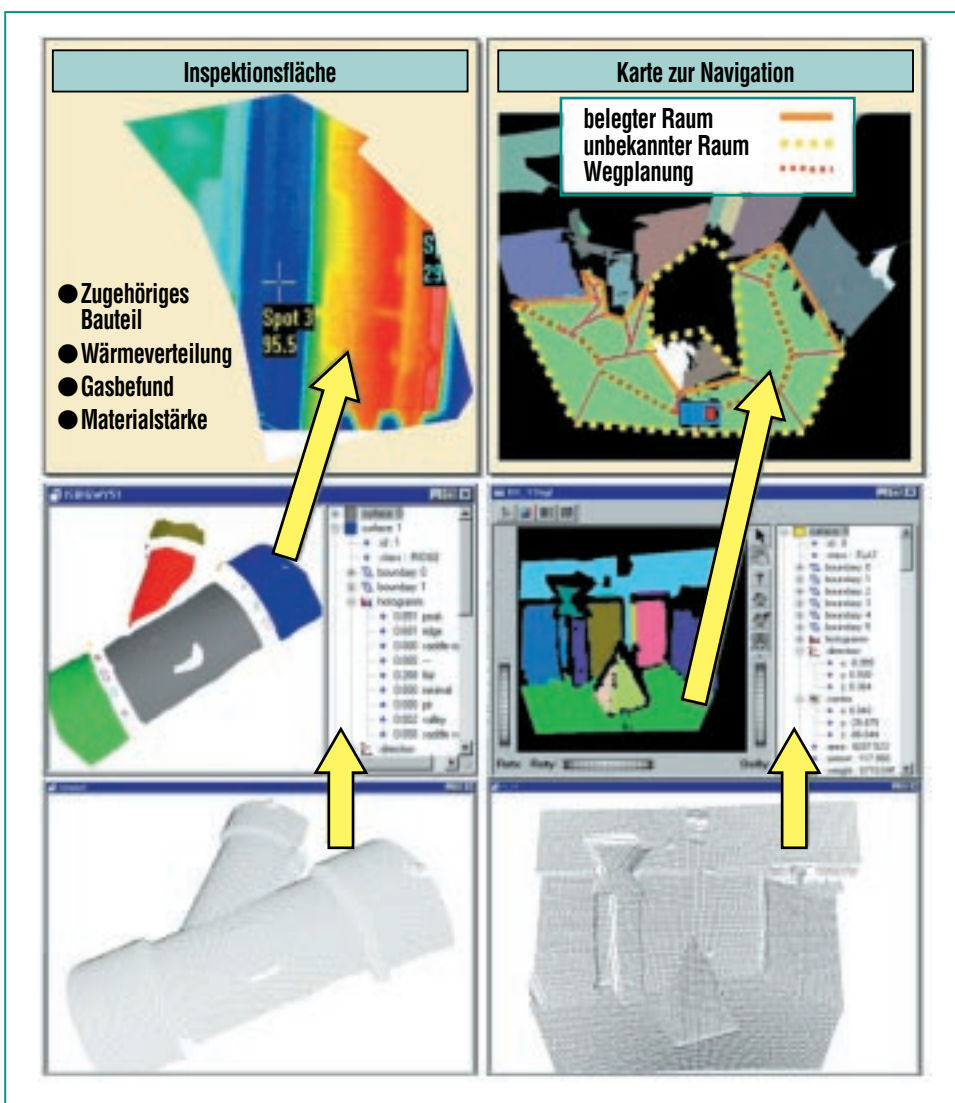


Abb. 1: Vom Tiefenbild (unten) über das attributierte Oberflächenmodell (Mitte) zum Weltmodell (oben), das mobilen Robotern gleichermaßen zur Inspektion wie zur Erkundung der Einsatzumgebung dient. Das Bild oben links zeigt ein der zylindrischen Fläche aufgeprägtes Infrarotbild (vom Drehrohrföfen der THERESA-Anlage). Im Bild oben rechts ist die Bodenfläche des Fahrzeugs als Grundriss dargestellt, an dem die Skelettierung, Wegplanung und Abgrenzung des belegten bzw. unbekannten Raumes vorgenommen wird.

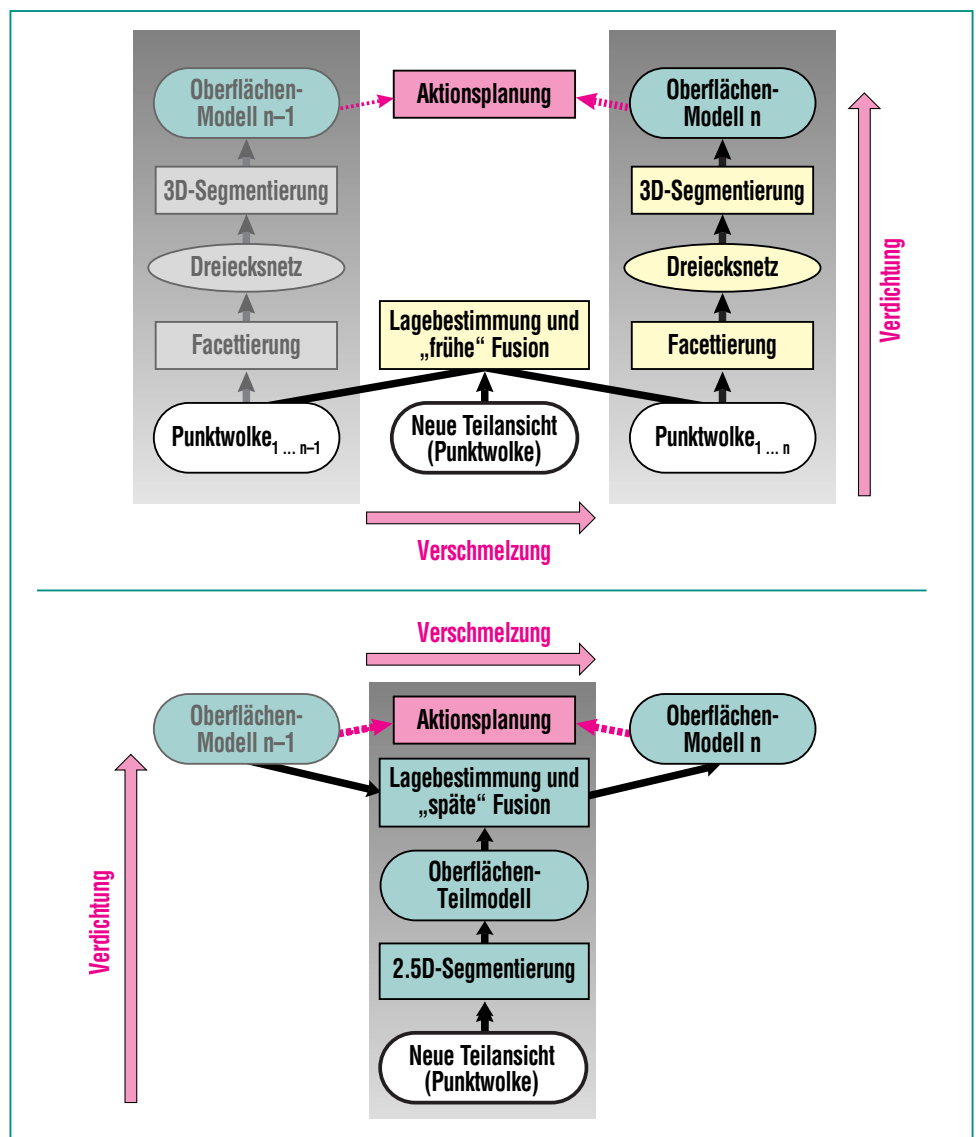
(beim Auto-Navigationssystem die digitalisierte Straßenkarte), *voraussetzt*, und nicht überflüssig macht. Mobile Systeme, die sich selbst charakteristische natürliche, ortsfeste Landmarken als Referenzen suchen, sind universeller und flexibler einsetzbar. Wand-, Boden- und Deckenflächen, Pfeiler, Röhren, Behälter oder sonstige auffällige Objekte können dazu dienen.

Ein beliebtes Verfahren zur Gewinnung von 3D-Modellen ist die *Rekonstruktion aus Silhouetten* [4]. Dabei rotiert das Objekt auf einem Drehteller, oder die Kamera fährt um das Objekt. Das Volumen wird durch sukzessive Schnittbildung von Kegelvolumina erzeugt, die den Blickpunkt als Scheitel und den Umriss des Objektes als Grundfläche haben. Dies funktioniert nur, wenn das Objekt als Ganzes im Sensorfenster sichtbar und vom Hintergrund einfach zu trennen ist, eine bei komplexen Anlagen nicht erfüllbare Annahme. Hier kommt nur die *Rekonstruktion aus überlappenden Teilansichten der Oberfläche (Projektionen)* [5] in Frage.

Die Rekonstruktion muss also die *Verschmelzung* immer größerer Karten, und gleichzeitig die *Verdichtung* von Punkten zu Flächen und schließlich symbolischen Merkmalen leisten. Es kommt nun darauf an, wie beide Aufgaben miteinander verzahnt sind. Fast alle Rekonstruktionsverfahren sammeln und verschmelzen dichte Punktmodelle aller Teilansichten (*Frühe Fusion*), und erzeugen daraus erst am Ende ein Flächenmodell [6]. Sie sind damit nicht Schritt haltend (Abb. 2). Ein

neues, am IAI entwickeltes Verfahren [7, 8] registriert und verschmilzt direkt die reduzierten Flächenmodelle (*Späte Fusion*). Das symbolische Modell zur Pla-

nung der Exploration, Navigation oder Inspektion wird also fortlaufend erweitert. Durch die Verdichtung verursachte Fehler und Informationsverluste wie Über-



**Abb. 2:** Zwei Wege zur fahrtbegleitenden Kartierung. Die frühe Fusion (oben) kann neue Teilansichten nur als Punktwolke oder Dreiecksnetz lagerichtig verschmelzen. Aus diesem wachsenden 3D-Punktmodell müsste eine zur Aktionsplanung geeignetere Karte, zum Beispiel Oberflächenmodell, jedes Mal neu abgeleitet werden. Facettierung und 3D-Segmentierung sind dabei kritische Operationen. Bei der späten Fusion (unten) wird jede Teilansicht sofort verdichtet (segmentiert) und direkt mit dem Oberflächenmodell der aktuellen Karte verschmolzen. Die Verschmelzung erfolgt also auf symbolischer Ebene; Rohdaten früherer Teilansichten sind nicht mehr verfügbar.

oder Untersegmentierung oder fehlende Flächen müssen dabei aber toleriert werden. Ein numerisch genaues, photorealistisch glattes, zusammenhängendes CAD-Modell ist ohne eine interaktive Nachbearbeitung [9] so nicht zu erreichen.

### Realisierte Verfahren zur Lokalisierung und Kartierung

#### Drei-Ebenen-Architektur

Wir beschränken uns hier auf die paarweise Verarbeitung segmentierter Teilansichten derselben

Umgebung mit unbekannter Überlappung. Die Zuordnung einander entsprechender („korrespondierender“) Flächen, und die Schätzung ihrer Lagebeziehung stehen in enger Wechselwirkung. Beide werden gleichzeitig so bestimmt, dass eine Gesamtähnlichkeit der Teilansichten maximal wird. Diese wird, vereinfacht gesagt, um so größer, je ähnlicher die korrespondierenden Flächenmerkmale unter der geschätzten Lage und je umfassender die Zuordnung. Da das Optimierungsproblem im ungünstigsten Fall exponentielle Komplexität besitzt, aber unter der Echtzeitbedingung

des mobilen Roboters steht, erweist es sich als sinnvoll, verschiedenartige Verfahren zu kombinieren, die auf drei Ebenen miteinander kooperieren und gleichzeitig um die beste Lösung in vorgegebener Zeit konkurrieren (Abb. 3).

Die unterste Ebene paart Flächen in einer tiefenbegrenzten Baumsuche, welche Sektoren begrenzter Knotenzahl nacheinander absucht und lageunabhängig die Gesamtähnlichkeit maximiert. Sie ist damit auch robust gegenüber unbekannter oder falscher Anfangslage. Die mittlere Ebene verfeinert die besten Zu-

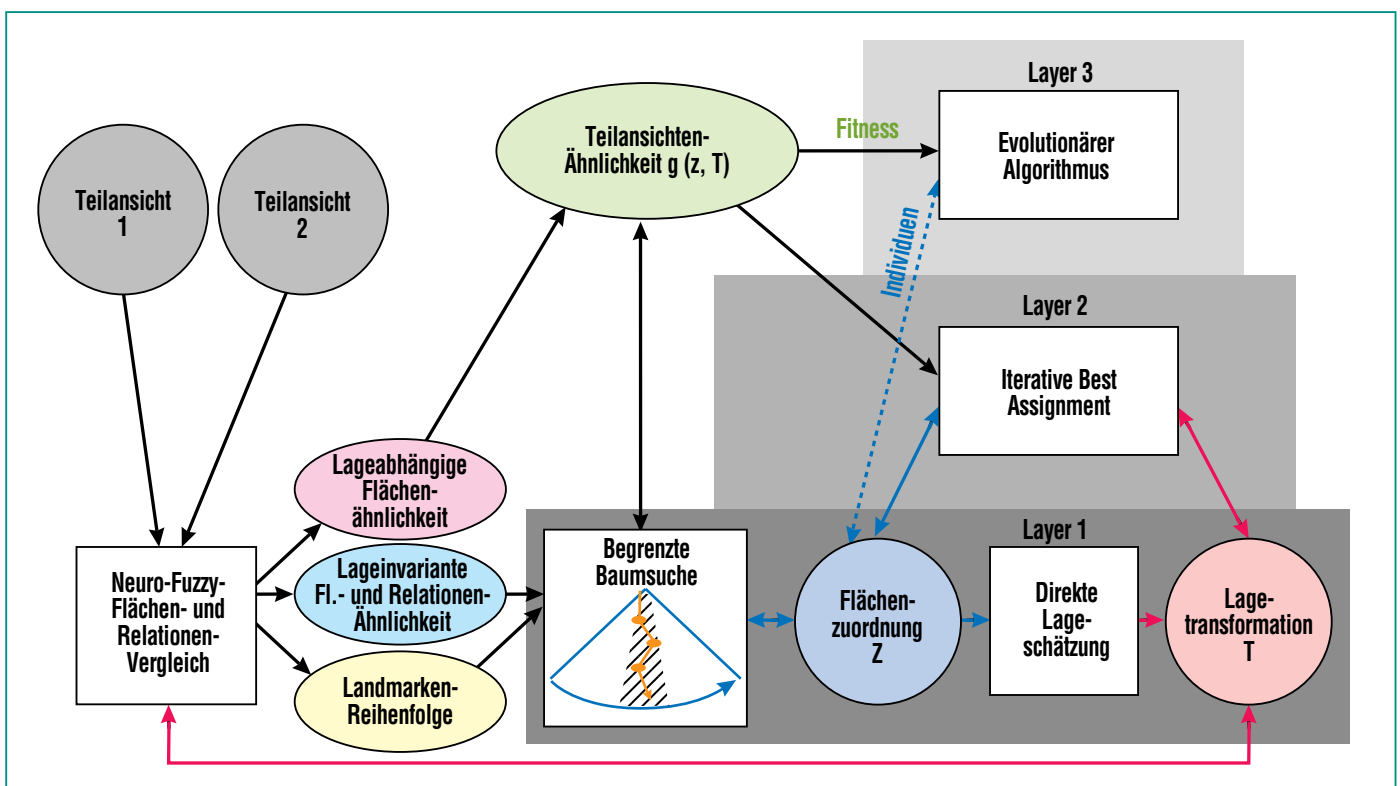


Abb. 3: Verfahren, das Oberflächenmodelle unbekannter Überlappung lagerichtig zusammen fügt („registriert“). Layer 1 findet korrespondierende Flächen durch breiten- und tiefenbegrenzte Baumsuche und schätzt daraus eine erste grobe Lagetransformation. Layer 2 optimiert gleichzeitig die Flächenzuordnung und verfeinert die Lagetransformation. Layer 3 mutiert und rekombiniert Zuordnungen, um aus lokalen Minima zu entkommen. Gemeinsame Zielfunktion ist die Ähnlichkeit der Teilansichten, die sich aus den lageabhängigen Ähnlichkeiten der korrespondierenden Flächen und Flächenbeziehungen zusammen setzt.

ordnungen und daraus geschätzte Lagetransformationen im Hinblick auf maximale lageabhängige Ähnlichkeit. Die oberste Ebene, ein evolutionärer Algorithmus, bringt ein stochastisches Element ein: sie verändert Zuordnungen über die genetischen Operatoren der Mutation und Rekombination, und bedient sich wiederum der beiden unteren Ebenen zur Feinoptimierung der Lage und zur Ähnlichkeitsberechnung. Die Teilansichten-Ähnlichkeit dient als Fitnessfunktion zur Bewertung. Während bei großer Überlappung der Teilansichten oder eindeutiger Lösung die unteren Ebenen zuerst erfolgreich sind, entkommt die obere Ebene leichter den lokalen Optima der Lagetransformation, sofern insgesamt mehr Zeit zur Verfügung steht.

### Flächen-Ähnlichkeitsmaße

Für eine gute Bewertung der Lösungen sind schon auf Merkmals-ebene *Ähnlichkeitsmaße* wichtig, welche Verdeckung, begrenzte Sicht, ungenaue Flächenattribute sowie Formabweichungen der Berandungen in einem hohen Maße tolerieren und gleichwohl unterscheidungs-fähig bleiben. Drei solcher Maße wurden als Neuro-Fuzzy-Regelwerke entwickelt: die lageinvariante und die lageabhängige Flächenähnlichkeit sowie die Relationenähnlichkeit. Normierte Differenzen oder Quotienten der Attributwerte bilden den Eingabevektor, ein Wert im Intervall [0,1] das Ausgangssignal. Die Verknüpfung wird durch ein Fuzzy-Regelwerk beschrieben; dazu müssen die Ein- und Ausgangssignale als lingu-

istische Variable mit Zugehörigkeitsfunktionen spezifiziert werden. Deren Parameter und die Regelgewichte werden – nach Training an Beispielen – durch ein Neuronales Netz eingestellt, das dem Fuzzy-Regelwerk äquivalent ist und das durch ein kommerzielles Entwicklungswerkzeug (FuzzyTech 5.01) automatisch erzeugt wird [7].

Typischerweise bestimmen einige der Eingangsattribute die Wirkung anderer auf den Ausgang. Die Verknüpfung ist also nichtlinear. Ist zum Beispiel das Attribut „Verdeckungsgrad“ bei zwei Flächen hoch, was hohe Unsicherheit bedeutet, haben Flächeninhalte oder Formeigenschaften nur geringen Einfluss auf ihre lageinvariante Ähnlichkeit. Oder: solange der „Versatz“ einer Fläche normal zu einer anderen hoch ist, bleibt deren lageabhängige Ähnlichkeit durchweg niedrig. Wenn die Fehler normal zur Oberfläche dagegen klein und die Richtungsvektoren fast gleich sind, zählt der Grad der Überlappung der – gegenüber Rauschen und Verdeckung empfindlichen – Berandungen, der letztlich für die Verschmelzbarkeit der Flächen wichtig ist.

### Zuordnung nach Landmarkenkriterium

Als entscheidend für den Erfolg der *Baumsuche* [10] erweist sich, ob es gelingt, diejenigen Flächen einer Teilansicht zuerst zuzuordnen, die mit der höchsten Wahrscheinlichkeit überhaupt eine korrespondierende in der Nachbaransicht besitzen, und zu denen die passende Fläche möglichst eindeutig und zuverlässig ange-

geben werden kann. Flächen mit diesen Eigenschaften bezeichnen wir als gute natürliche *Landmarken*. Um sie zu finden, werden mehrere Kriterien verwendet, die Flächeneigenschaften einer oder beider Teilansichten bewerten. Eine gute Landmarke

1. ist vorzugsweise eben (hat einen hohen Anteil lokal planarer Pixel)
2. ist unverdeckt (hat einen hohen Anteil von Berandungen, der durch Relationen zu Nachbarflächen erklärt ist)
3. hat viele Nachbarflächen, die in Relation zu ihr stehen
4. ist gut sichtbar (nahe am Sensor, dem Sensor zugewandt, hat hohe Punktdichte)
5. ist markant: wenige Flächen der Vergleichsansicht, aber mindestens eine, haben ähnliche Merkmale
6. ist relational verträglich: für die beste Zuordnung zur Nachbaransicht ist die mittlere relationale Ähnlichkeit aller diese beiden Flächen enthaltenden Flächenpaare hoch
7. hat eine zumindest mittlere Größe
8. liegt zentral und grenzt möglichst wenig an den Rand des Sensorblickfeldes
9. hat oft eine invariante Orientierung im jeweiligen Sensor- bzw. Fahrzeugkoordinatensystem
10. besitzt eine gewisse Stetigkeit, war also in Nachbaransichten bereits korrespondierend.

Die Reihenfolge der Flächen nach absteigender Landmarkenqualität wird sogar dynamisch in Abhängigkeit vom aktuellen Suchpfad angepasst (*Forward Checking* [11]). Dies vermeidet die Leerzuweisung von Flächen (*Wildcard* [10]) mit ihrer kombinatorischen Aufblähung, die bei starrer Reihenfolge notwendig ist, wenn mit Flächen ohne Korrespondenten zu rechnen ist. Die *Wildcard* macht jede Komplexitätsreduktion, die für die echten Zuordnungen durch die Ähnlichkeitsbeschränkungen erzielt wurde, wieder zunichte.

### Direkte Lageschätzung

Aus dem best bewerteten Suchpfad jedes Baumsektors werden korrespondierende Flächenmerkmale extrahiert und daraus eine Transformation geschätzt, die im einfachsten Fall aus einer Drehung im Raum (Rotationsmatrix) und einer Verschiebung (Translationsvektor) besteht. Zur Schätzung existieren geschlossene Verfahren, welche Euklidische Vektorabstände minimieren [12]. Sie minimieren zwar nicht direkt unser komplexeres Ähnlichkeitsmaß, liefern aber brauchbare Startwerte für die optimale Lage.

Paare von Richtungs- oder Achsenvektoren korrespondierender Flächen legen zunächst nur die Rotation fest. Die Bestimmung der Translation erfordert zusätzlich Punkte, etwa korrespondierende Flächenschwerpunkte oder Stützpunkte der Berandungspolygone. Da diese Merkmale stark von der Blickrichtung, Verdeckung und Segmentierung abhängen, dürfen sie nicht direkt aufeinander abgebildet werden. Vielmehr sind die Lotabstände der Punkte zu ihren Partnerflächen zu minimieren (Punkt-Flächen-Korrespondenzen). Da dieses Problem nicht auf eine geschlossene Lösung für Rotation und Translation gemeinsam führt, wird aus Vektorpaaren zuerst die Rotation bestimmt, und zu dieser dann im zweiten Schritt die Translation, die die quadratischen Lotabstände minimiert.

### Iterative Verfeinerung

Da die Baumsuche nur lageinvariante Beschränkungen einsetzt, muss es weder eine Lagetransformation geben, die alle Flächen des Suchpfades paarweise aufeinander abbildet, noch muss die Zuordnung die größtmögliche sein. Zuordnung und Lage sind also weiter zu verbessern. Dabei wird abwechselnd die Lage fixiert, Flächen aus der Zuordnung entfernt und neue ihr hinzugefügt, solange die Ähnlichkeit der Teilansichten wächst, und dann die Zuordnung fixiert und die optimale Lage dazu neu geschätzt. Anders als bei dem bekannten *Iterative-Closest-Point*-Algorithmus [13] zur Registrierung von 3D-Datensätzen schrumpft oder wächst

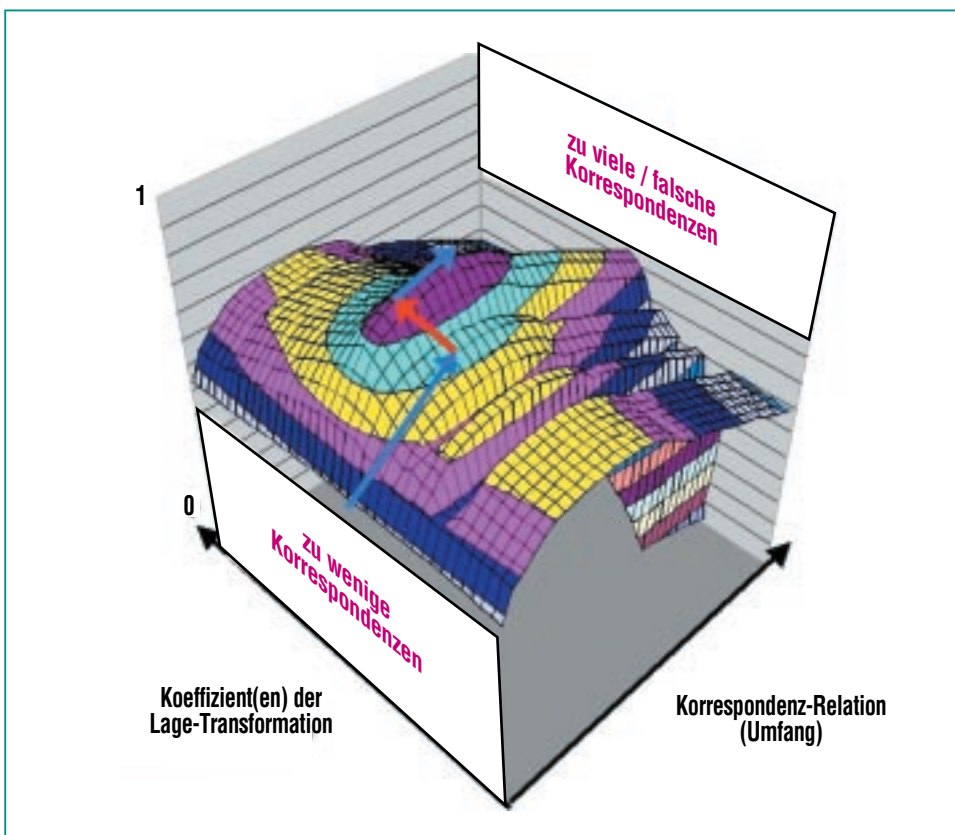


Abb. 4: Teilansichtenähnlichkeit als Funktion der Lagetransformation und Zuordnung für zwei konkrete, segmentierte Teilansichten eines Innenraums (vgl. auch Abb. 5). Der blau-rot gezeichnete Pfad symbolisiert das abwechselnde Erweitern (oder Schrumpfen) der Zuordnung und das Nachjustieren der Lagetransformation.



hier also die Menge korrespondierender Merkmale.

In Abb. 4 ist die lageabhängige Ähnlichkeit zweier Teilansichten beispielhaft und vereinfacht als Funktion nur eines von sechs Lagekoeffizienten und der Anzahl zugeordneter Flächen dargestellt. Die zugrunde liegenden Flächen- und Relationenähnlichkeiten sind um Strafterme vermindert, die aus der Verteilung der Ähnlichkeiten automatisch berechnet werden und die Gesamtähnlichkeit bei Hinzunahme schlecht korrespondierender Merkmale sinken lassen. Mit zunehmender Größe der Zuordnung sinkt also die Ähnlichkeit wieder ab. Zu gegebener Zuordnung bewertet die Ähnlichkeit den Lagefehler der Transformation, der im Fall zu weniger Korrespondenten aber nur wenig Aufschluss über die gesuchte Transformation gibt („flache“ Flanke), im Fall zu vieler oder falscher Korrespondenten dagegen viele lokale Lagemaxima aufweist („zerklüftete“ Flanke).

### Lagefortschreibung

Grundsätzlich funktioniert das Verfahren, auch wenn das Fahrzeug ohne Vorwissen über seine Lage in der Umgebung ausgesetzt wird. Steht solches Wissen in Form von Weggebersignalen (Odometrie und Koppelnavigation) zur Verfügung, kann es zu einer effizienteren fortlaufenden Lokalisierung genutzt werden. Dazu werden die Positions- und Richtungsänderungen des Fahrzeugs zwischen zwei Teilansichten zunächst aufintegriert und daraus eine Transformation geschätzt. Besonders die Rotati-

on wird nach längerer Fahrt sehr ungenau. Ist die Verteilung, oder sind obere Schranken für die Schätzfehler der Transformation bekannt, so kann aus der Distanz zwischen vorhergesagter (transformierter) Lage von Merkmalen der ersten und beobachteten Merkmalen der zweiten Ansicht ein Ähnlichkeitswert zwischen 0 und 1 angegeben werden, der Merkmalszuordnungen außerhalb des Unsicherheitsbereiches ausschließt. Damit wird der Suchbaum nochmals drastisch ausgedünnt.

### Verschmelzung von Oberflächenmodellen

Nachdem die größtmögliche Flächenzuordnung bestimmt und eine der beiden Teilansichten unter der berechneten Lage transformiert wurde, wird versucht, alle Flächenstücke, die über Zuordnungen direkt oder indirekt verknüpft sind, miteinander zu verschmelzen. Dazu werden die Berandungspolygone so fusioniert („vernäht“), dass die Vereinigungsmenge der Teilflächen umschlossen wird. Ein neuartiger Algorithmus erkennt und mittelt im 3D-Raum *gleichlaufende* Konturstücke mit geringem Abstand und verfolgt an *Verzweigungs- oder Kreuzungsstellen* die *lokal erweiternde* der beiden Konturen [8]. Neben der äußeren Berandung können bei diesem Prozess zusätzliche innere Berandungen („Löcher“) entstehen. Andere Flächenattribute wie Schwerpunkte oder Richtungsvektoren werden aus den Attributen der Teilflächen gewichtet gemittelt.

Flächen ohne Korrespondenten oder solche, deren Verschmel-

zung scheitert, werden der Resultatbeschreibung hinzugefügt, falls keine Sichtbarkeitskonflikte mit weiteren Flächen bestehen. Andernfalls werden sie gelöscht. Zur Prüfung der Sichtbarkeit werden die Berandungen in einem gemeinsamen Koordinatensystem dargestellt und die Überlappungen festgestellt.

### Beispiele zur Kartierung

Die in Visual C++ 6.0 realisierten neuen Algorithmen zur Rekonstruktion von Objekten und Innenräumen werden zunächst an mehreren Bildserien erprobt, bevor sie auf ein Fahrzeug portiert werden. In diesem Beitrag werden segmentierte Tiefenbilder (128x128 Pixel) untersucht, die in einer Laborumgebung an *unbekannten* Positionen von einem realen Fahrzeug mit Laserscanner aufgenommen und von der University of South Florida [14] zur Verfügung gestellt wurden. Abb. 5 zeigt ein Verschmelzungsergebnis von sieben Teilansichten. Die Tiefe des Suchbaums ist auf 12 begrenzt, und jeder Sektor umfasst 1000 Knoten. Alle Ergebnisse beruhen auf der besten Zuordnung des *ersten* Sektors des Suchbaums, daher sind die Laufzeiten für paarweise Zuordnung und Registrierung auf 300-800 msec begrenzt (auf einem 650-MHz-PC). Die eigentliche Verschmelzung hat einen ähnlichen Zeitbedarf. Der Anteil der Fehlzuweisungen in der Baumsuche liegt hier bei etwa 3.5%. Abb. 6 zeigt mit der Rekonstruktion eines Sessels aus 16 Teilansichten, dass das Verfahren auch große Messfehler und Verzerrungen verkraftet.

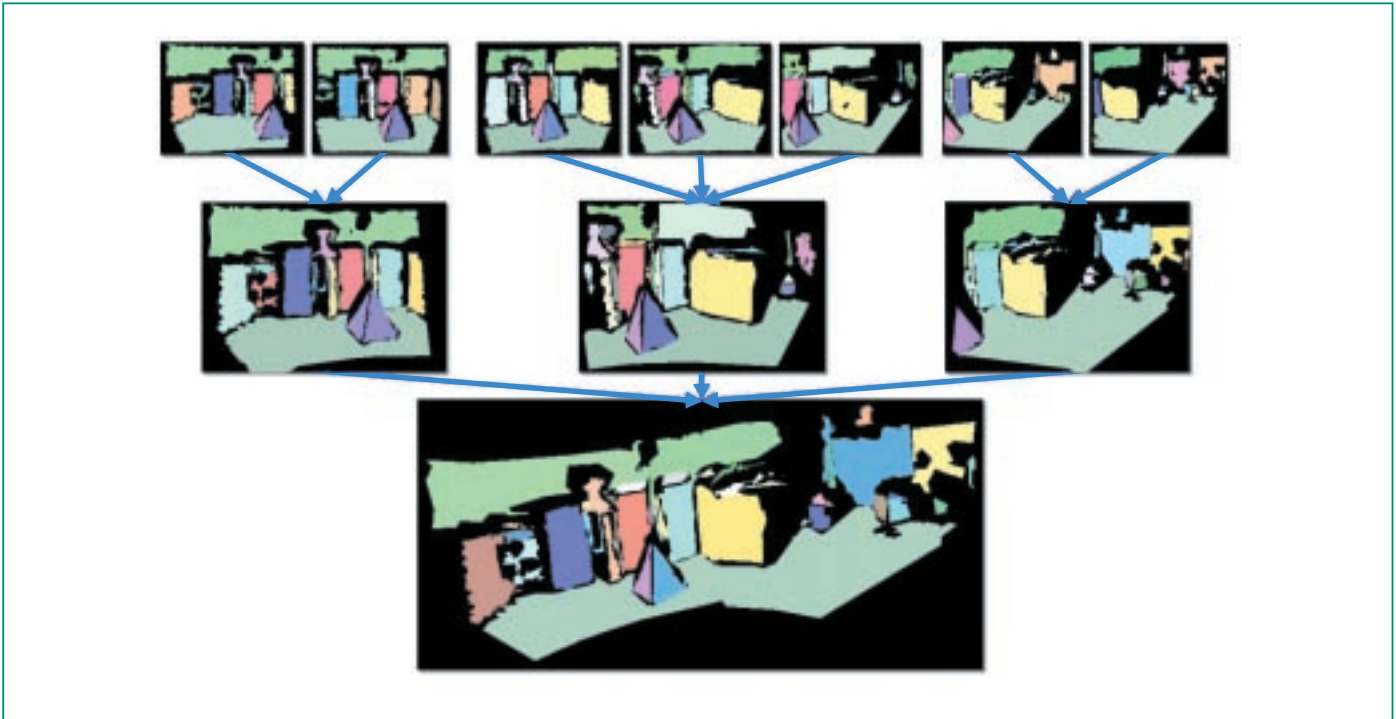


Abb. 5: Verschmelzung einer Sequenz aus sieben segmentierten Oberflächenmodellen eines Laborinnenraums. Die zugehörigen Aufnahmepositionen des Fahrzeugs sind unbekannt.

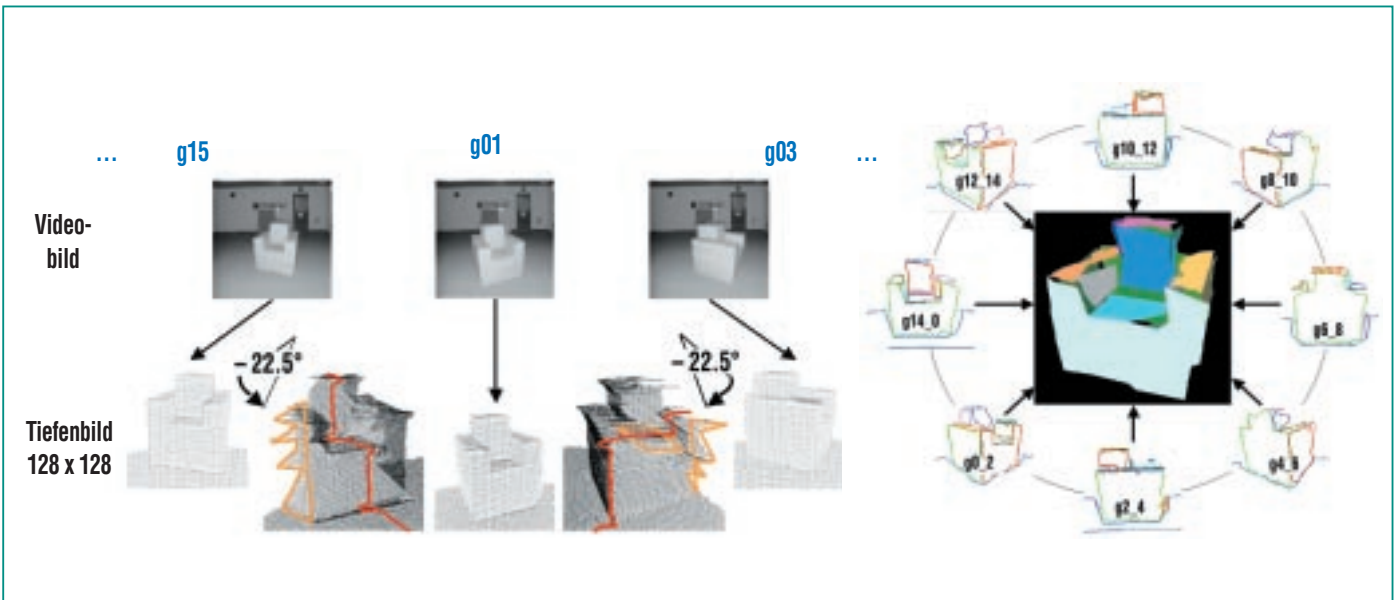


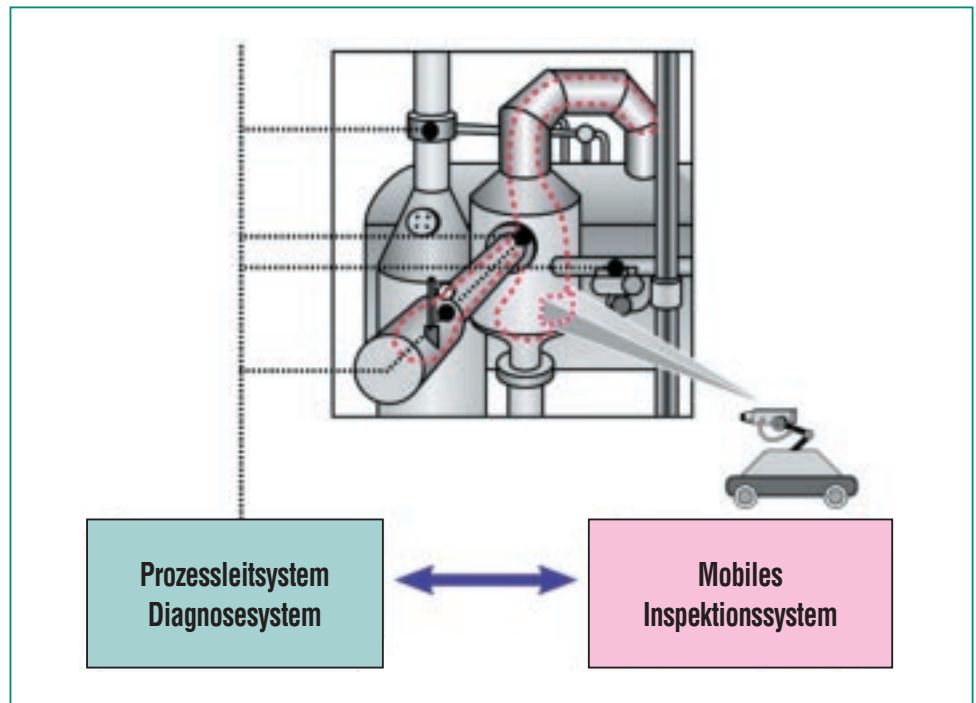
Abb. 6: Rekonstruktion eines Sesselmodells aus 16 Tiefenbildansichten, die grobe Messfehler in Richtung der optischen Achse aufweisen (linkes Bild, die rote Scanlinie verdeutlicht den Verlauf von Konvex- und Konkavkanten, orange Bereiche stehen für 'mixed-points'). Diese Fehler werden durch Drehung des linken bzw. rechten Tiefenbildes um  $\pm 22.5^\circ$  in die Perspektive der mittleren Ansicht sichtbar. Das Bild rechts illustriert das Ergebnis der letzten acht Verschmelzungsschritte, wobei jedes Teilmodell aus drei benachbarten, segmentierten Ansichten entstand.

Neben einer systematischen quantitativen Bewertung und weiterer Verbesserung der Zuverlässigkeit arbeiten wir an der gemeinsamen Lageoptimierung von mehr als zwei überlappenden Teilansichten durch elastische Graphen. Zur Geometriebeschreibung von Kesseln, Rohrleitungen etc. sollen in Zukunft generalisierte Zylinder an Stelle allgemeiner quadratischer Oberflächen eingesetzt werden.

### Zukunftsvision Mobile Inspektion

Mobile Roboter, einzeln oder im Team, sollen einmal großtechnische Anlagen mit Hilfe von Wärmebildkameras, elektronischen Mikronasen und weiteren zerstörungsfreien Prüfsensoren flächendeckend von außen inspizieren und so eine Störungserkennung betreiben. Gegenstand der Inspektion können Rohrleitungen, Öfen oder Kälteanlagen mit ihrer Isolierung, Kessel, Kolonnen und Reaktoren, Ventile, Abluft- und Filterstrecken, Siebe, Pumpen und Lüfter, aber auch z.B. elektrische Anlagen sein. Das mobile System ergänzt das stationäre, über Prozessleitsystem (PLS) erschlossene In-line-Messstellennetz und soll wie dieses routinemäßig im Einsatz sein (Abb. 7).

Die Gesamtaufwendungen für Instandhaltung und Wartung liegen in Deutschland bei ca. 10% des Bruttosozialproduktes und betragen 1996 rund 265 Milliarden DM. Einen **Bedarf** für solche mobilen Systeme für Inspektion und Wartung sehen wir in folgenden Entwicklungen:



**Abb. 7: Die Führung und Überwachung verfahrenstechnischer Anlagen durch Prozessleitsysteme mit diskreten, stationären, im Innern angeordneten Sensoren wird ergänzt durch ein mobiles, auf Fahrzeuge verteiltes Sensornetz zur flächendeckenden Außeninspektion.**

1. Inspektion und Instandhaltung spielen eine wachsende Rolle im integrierten Kosten-, Qualitäts- und Umweltmanagement. Aus welchen Motiven auch immer – flexiblere Produktion, gesetzliche Auflagen zur Emissionsminderung, Senkung der Unfallzahlen, Senkung der Energiekosten und Klimaschutz, Werterhalt der Anlagen und Steigerung ihrer Verfügbarkeit – der Trend geht auch in der Instandhaltung zu formalisierten, standardisierten und zum Teil automatisierten Arbeitsweisen (*computer-aided facility management, CAFM*).
2. Die genannten Gründe führen auch dazu, dass auf derselben Anlage in immer kürzerer Folge neue Verfahren und Prozesse, Varianten und Verbesserungen „ausprobiert“ werden. Dies bedingt häufigeres An- und Abfahren oder Umstellen der Fahrweise, Befüllen, Entleeren und Reinigen. In solchen speziellen Wartungsaktionen scheint neben unerkanntem Verschleiß von Bauteilen eine Hauptursache von Betriebsstörungen und Unfällen in Anlagen zu liegen [15].
3. Stammpersonal für eine qualifizierte manuelle Inspektion bei den Betreibern ist knapp. Diese wenigen Fachleute, z.B. Thermographen, haben Wichtigeres zu tun, als routinemäßig in lauten, heißen oder emissionsintensiven Anlagen zu patrouillieren. Mit lei-

stungsfähigen Werkzeugen könnten sie mehr erreichen. Oftmals werden externe Anbieter von Inspektions-Dienstleistung gerufen, wenn Probleme auftreten. Eine wirklich flächendeckende Zustandserhebung wird aus Zeit- und Kostengründen oft nicht realisiert.

- Stationäre Sensornetze sind zu grobmaschig zur Störungsfrüherkennung und zur Ortung von Defekten. Es erscheint impraktikabel, in einer komplexen Anlage überall dort einen Druck-, Temperatur- Gas- oder Lecksensor oder eine Kamera vorbeugend zu installieren, wo jemals ein Wächter sinnvoll werden könnte. Die Fehlerdia-

gnose allein aufgrund von In-line-Messgrößen erfolgt nicht zeitnah und nicht ursachenah: eine sich langsam anbahnende Funktionseinbuße wirkt sich oft erst über eine längere Ereigniskette an einem anderen Bauteil aus, wo sie vom Prozessleitsystem etwa als Druckabfall oder Notabschaltung bemerkt wird (Abb. 8).

- Zur Innen- und zum Teil auch Außeninspektion von Rohrleitungen wurde eine Reihe schwimm- oder kriechfähiger Spezialsysteme mit Ultraschall-, Magnetstreulicht- oder Röntgensensoren [16, 17, 18] entwickelt. Die bekannten Lösungen sind in ihrem Einsatz-

spektrum durch Rohrdurchmesser, Rohrgeometrie, zulässige Wandstärken und Material stark eingeschränkt.

Mobile Inspektion verspricht wichtige **Vorteile** gegenüber dem geschilderten Stand der Technik:

**Flächendeckend und reproduzierbar:** Mobile, oft kostspielige Inspektionssysteme sind flexibel einsetzbar, wo immer sie benötigt werden, statt dort zu messen, wo ein System installiert ist. Speziell Infrarotkameras liefern flächenhafte Bilder hoher Auflösung. So können die Fahrzeuge auch große Anlagen effizient absuchen, etwa vom Weitwinkel-Panorama zum schwer zugänglichen

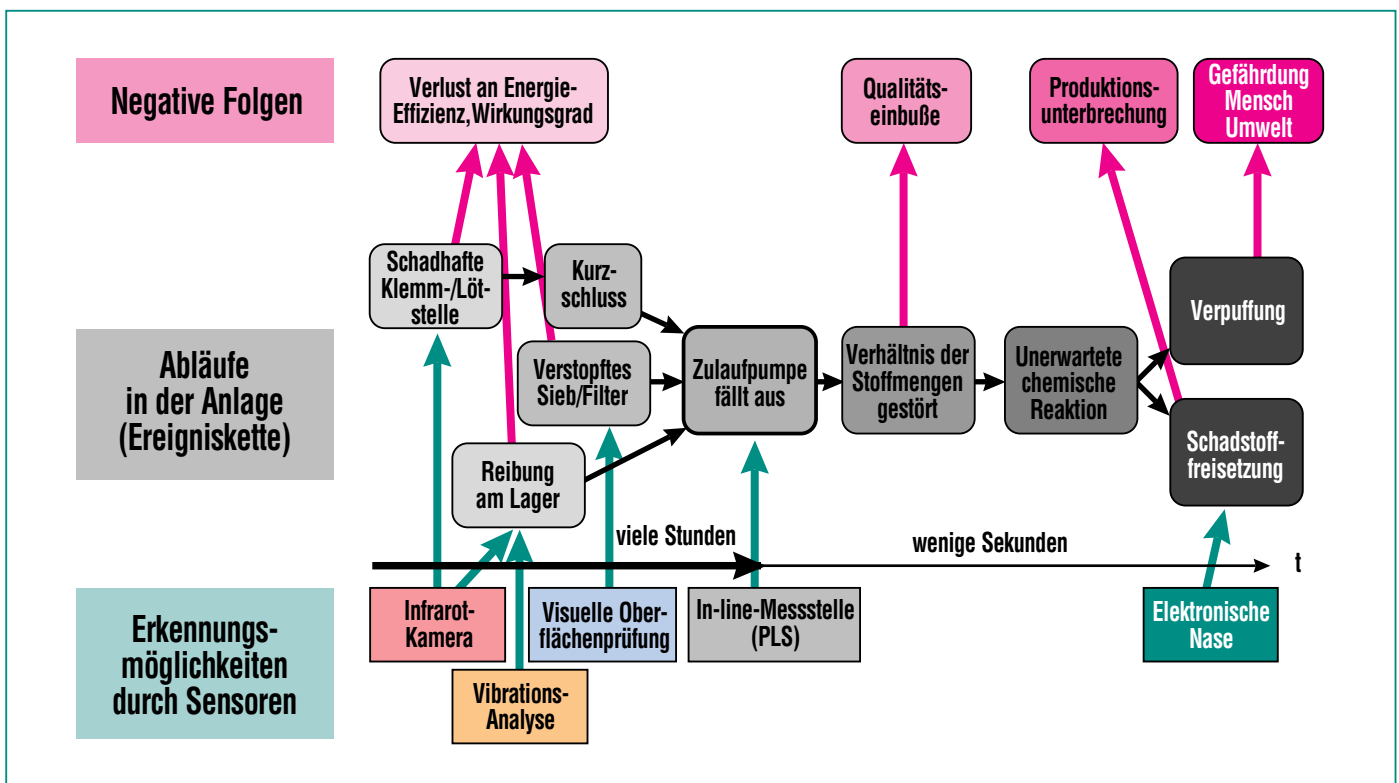


Abb. 8: Ereigniskette in einer chemischen Anlage, die letztlich zu einem Ausfall führen könnte, mit sensorielle Erkennungsmöglichkeiten. Zur Störungsfrüherkennung eignen sich in diesem Beispiel Infrarotkamera, visuelle Oberflächenprüfung oder Vibrationsanalyse, in anderen Szenarien Elektronische Nasen. Das Prozessleitsystem erhält vom Ausfall der Pumpe aber erst Kenntnis, wenn es für eine Störungsfrüherkennung zu spät ist.

Detail, zeitlich periodisch oder zustandsabhängig. Die Fahrzeuge können sich exakt und reproduzierbar zu bestimmten Bauteilen positionieren und vergleichbare Bildausschnitte immer wieder aufnehmen. Ihre individuelle und langfristige zeitliche Entwicklung („Anamnese“) liefert entscheidende Hinweise für eine automatische Auswertung wie für das Fachpersonal. Abweichungen von Normwerten für Temperaturverteilungen oder Gaskonzentrationen, auch wenn sich diese über einen Produktionszyklus ändern, lassen sich nachvollziehbar und lückenlos darstellen.

**Unbegrenzte Raumauflösung und Ortung:** Hochempfindliche *Elektronische Nasen* wie die am Institut für Instrumentelle Analytik (IFIA) entwickelten Systeme KAMINA [19] oder SAGAS werden, auf mobilen Fahrzeugen montiert und mit Geruchskarte und Suchalgorithmen ausgestattet, erst zu *Elektronischen Schnüffelhunden*, die selbständig etwa den Ort maximaler Konzentration eines austretenden Gases aufspüren. Auch die IR-Kamera kann im Zusammenspiel mit dem Lasersensor *Hot (oder Cold) Spots* in 3D lokalisieren.

**Zeit- und ursachennahe Störungsdiagnose:** da Alterung von Bauteilen oder Überlast sich oft langsam anbahnen, bringen die räumlich und zeitlich engmaschige Überwachung und die Kenntnis der realen Abnutzung von Bauteilen selbst bei plötzlichen Ausfällen einen Reaktionsvorteil. Ist die Inspektion auf mehrere Fahrzeuge verteilt, die über ein Mobilfunknetz kommunizieren, kann an weit entfernten Orten ei-

ner Anlage gleichzeitig gemessen werden.

**Nicht-invasive Inspektion:** Erstens wird das tatsächliche Betriebsverhalten während der Produktion beobachtet. Zweitens kann das Inspektionssystem nachträglich in einer bestehenden Anlage installiert werden; über die Stromversorgung (Akku-Ladestationen) hinaus stellt das System keine harten Anforderungen an die Infrastruktur.

**Informationstechnische Vernetzung:** die Fahrzeuge sind über eine Basisstation mit dem Leitsystem oder mit Systemen zur Diagnose oder Instandhaltungsplanung vernetzbar. Automatisch erstellte Inspektionsprotokolle können sicherheitstechnische Abnahmen erleichtern. Mit zusätzlichen Software-Modulen lassen sich Abnutzungsvorräte von Bauteilen für eine zustandsorientierte Instandhaltung schätzen. Auf der Basis modellgestützter thermographischer oder chemischer Auswertung können Bilanzen zur Energieeffizienz, Emissionen oder Produktqualität erstellt werden.

### *Meilensteine der Entwicklung*

Leitbild soll die Inspektion einer intakten und über Ebenen oder Rampen im Prinzip zugänglichen Anlage sein, nicht das „Trümmerszenario“, das zur Entwicklung vielgliedriger Fahrzeuge oder Schreitwerke mit komplexer Mechanik und Bewegungssteuerung herausfordert. Der Roboter soll auf einer kommerziell verfügbaren fahrbaren Grundplattform aufbauen; er sollte klein und wen-

dig sein (Wenderadius Null) und dank geeigneter Radsätze kleinere Hindernisse wie Kabel, Schläuche oder Stufen bis ca. 8 cm problemlos überwinden können. Um auf verschiedenen Niveaus aktiv zu werden, sollen mehrere Fahrzeuge eines Teams geeignet verteilt werden. Wo dies möglich ist, sind Lastenaufzüge oder Kräne zur Niveauüberwindung per Funk zu nutzen. Trotz des visionären Gesamtzieles lassen sich überschaubare Szenarien und Meilensteine der Entwicklung angeben.

### **1. Trainingsphase:**

Der Wartungsingenieur bringt dem Fahrzeug die Grundprogramme zur Inspektion der Anlage durch *Vormachen* bei. Er bestimmt den Fahrkurs und spezifiziert, welche Anlagenkomponenten mit welchen Sensoren oder Kameras zu beobachten, prüfen oder messen sind. Das Manövrieren des Fahrzeugs und das Positionieren der Kamera über Schwenk-Neige-Kopf können manuell per Joystick, mit Hilfe optischer Zeigeinstrumente (Laser-Pointer) oder durch Erkennung menschlicher Hautfarbe, Gesichter oder Gestik durch das Fahrzeug erfolgen. Der Bediener benennt die Komponenten, kommentiert über Spracheingabe die Sensorbilder („aktuelles Wärmebild gehört zu *Pumpe X / Kessel Y ...*“) und spezifiziert wichtige Informationen über Zustandsabhängigkeit von Soll- oder Normbereichen (... „im Zustand *EIN* bzw. *AUS* von *X*, zu *Beginn* oder *am Ende* der Aufheizphase von *Y*“). Bei den elektronischen Nasen sind die für den Anlagenabschnitt relevanten Gasgemische zu

trainieren; sie werden als Referenzmuster abgelegt. Weitere für die Fahrzeuge wichtige Fähigkeiten, wie das Andocken an eine Akku-Ladestation zum Aufladen, die Prozedur zur Benutzung von Betriebsmitteln der Anlage, oder die Ausgrenzung „verbotener“ Bereiche wie Treppen werden ebenfalls per Training erworben. Alle Fahrprogramme dieser Phase beginnen und enden bei der Ladestation.

### **2. Automatische Inspektion:**

Das Fahrzeug kann die eingelesenen Inspektionsfahrten dank der im Training aufgebauten Anlagenkarte und seiner externen Lokalisierung nachvollziehen, situationsgerecht Messungen vornehmen und die „Sinneseindrücke“ zu den entsprechenden Bauteilen eintragen. Der Bediener soll Fahrkurse aus zuvor gelernten Bausteinen auch neu zusammensetzen können.

Während seines Einsatzes muss der Inspektionsroboter temporär auftretende Hindernisse erkennen und ihnen lokal ausweichen. Ferner muss er den Ladezustand seiner Akkus ständig überwachen, bei Bedarf die nächste Ladestation aufsuchen (mindestens eine sollte auf jedem Niveau vorhanden sein) und dann seine Mission fortsetzen. Ferner sind der Selbsttest der Komponenten, die Überwachung von Temperatur, Luftfeuchte und anderen Umgebungsbedingungen notwendig.

Eine leistungsfähige automatische Datenkompression und ein gegenüber thermischem Rauschen oder allmählicher Oxydation der Oberflächen toleranter Vergleich mit den eingelernten

Befunden sind bei umfangreichen Infrarotbildserien unerlässlich. Damit Bildausschnitte vergleichbar sind, müssen kleinere Positionsfehler durch automatische Bildregistrierung ausgeglichen werden. Nicht zuordenbare Befunde oder auffällige Abweichungen von gelernten Sollwerten oder Sollverläufen werden geeignet aufbereitet und dem Bediener an einer Basisstation präsentiert.

Ferner kann der Bediener die örtliche Eingrenzung auffälliger Werte, z.B. Gasbefunde, anfordern. Dabei spürt das Fahrzeug in einem lokal begrenzten Suchprozess („Stichfahrt“) das Konzentrationsmaximum auf.

### **3. Autonome Exploration:**

Sobald eine zusammenhängende Karte eines Anlagenbereiches vorliegt, ist der mobile Roboter auf eingelernte Wege nicht mehr angewiesen, sondern kann jede Kombination erreichbarer Bauteile selbst zu einer Inspektionsfahrt verbinden. Darüber hinaus kann er die bekannte Karte auch erweitern: nachdem etwa eine Pumpe durch Vormachen inspeiziert wurde, wird er aufgefordert, gleichartige Komponenten innerhalb eines Bereiches selbständig zu finden und sie inspektionstechnisch gleich zu behandeln. Eine noch ehrgeizigere Aufgabe besteht darin, unbekannte Bereiche aufgrund eines digitalisierten Anlagenschemas (Graphen) selbständig zu erkunden, welches nur qualitativ die erwarteten Komponenten, ihren Materialfluss und die inspektionstechnische Bedeutung (was ist womit und wie zu messen?) zeigt. Das detaillierte Geometriemodell erzeugt das Fahrzeug selbst und

benutzt es, um den weiteren Fahrweg zu planen.

In dieser Phase sollen auch die Aufgabenteilung mehrerer Fahrzeuge untereinander und die Kooperation mit dem Prozessleitsystem, der Instandhaltungsplanung oder einem Diagnosesystem realisiert werden. Das Prozessleitsystem profitiert von den neuartigen mobilen Messdaten wie Temperaturverteilungen, Alterungszuständen, Gaskonzentrationen, so wie umgekehrt inline-Messgrößen oder ein verhaltensbasiertes Prozessmodell die Diagnose störungsverdächtiger Inspektionsbefunde unterstützen kann.

### **4. Wartungsunterstützung:**

Spezielle Fähigkeiten zur Handhabung werden zuletzt entwickelt. Für die Vergleichsmessung per Kontaktthermometer, Materialprüfung mit einem Magnetstreulicht-Sensor, oder um an schwer zugänglichen Stellen zu „schnüffeln“, kann ein Leichtbau-Teleskoparm sinnvoll werden. Beschränkte sich die bisherige Funktion auf das Beobachten, so entwickelt sich vielleicht ein Fahrzeug des Teams zum Spezialisten, welches mit Werkzeugen und ggf. einer Wechseleinrichtung ausgerüstet wird, um die Techniker auch beim *Reinigen* der Anlage, dem *Nachstellen* oder *Auswechseln* bestimmter Teile zu unterstützen.

Zur Verbesserung der Inspektion schwer zugänglicher Anlagen können ultraleichte selbsttragende Flugkörper, zum Beispiel Miniatur-Luftschiffe, als Assistenzsysteme einem Bodenfahrzeug zur Seite stehen. Heute schon

sind Infrarotkameras verfügbar, die nur ca. 200g wiegen. Dennoch besteht ein Zielkonflikt: mit Helium als Füllgas ist ein Volumen von ca. 5m<sup>3</sup> erforderlich, um überhaupt Nutzlast zu tragen. Dies würde aber bei der vorherrschenden Zeppelinform die Manövrierfähigkeit und Zugänglichkeit zu stark einschränken.

### Wissenschaftliche Herausforderung

Um vorhandene Komponententechnologien moderner Service-roboter nutzbar für die Inspektion und Instandhaltung industrieller Anlagen zu machen, sind große, interdisziplinäre Anstrengungen erforderlich. Ein Kernpunkt liegt in

der Fusion der Ergebnisse von Oberflächen-, Wärme- und speziellen Inspektionssensoren, die sich optimal ergänzen können (Abb. 9).

Die Infrarotkamera bildet den idealen Leitsensor zur **Verdachterhebung**, da sie flächendeckend und effizient arbeitet und viele Schwachstellen einer Anlage sichtbar macht, lange bevor es zum Ausfall oder Störfall kommt. So gehen Schwelbrände oft von fehlerhaften Klemmverbindungen der Elektrik, schadhafter Isolierung, überlasteten Transformatoren oder heißlaufenden Lagern aus, und in allen diesen Fällen tritt lokal überdurchschnittliche Wärmeentwicklung

auf. Hier wird IR-Thermographie in der Industrie schon heute intensiv eingesetzt. Auch Lecks verraten sich oft durch lokale Abweichungen der Temperaturverteilung (Verdunstungskälte, heiße Flüssigkeiten), ebenso schadhafte Wärme- oder Kälteisolierungen oder Wärmebrücken an Schweißnähten. Verschmutzungen von Abluftkanälen und Filtern durch Staub, oder das Absintern von Dämmmaterial lassen sich ebenfalls oft erkennen.

Mit einer kalibrierten optischen Anordnung von IR-Kamera und Laserscanner werden Temperaturextrema nicht nur in der Bildebene, sondern auch in der Tiefe lokalisiert (**3D-Ortung**). Die 3D-

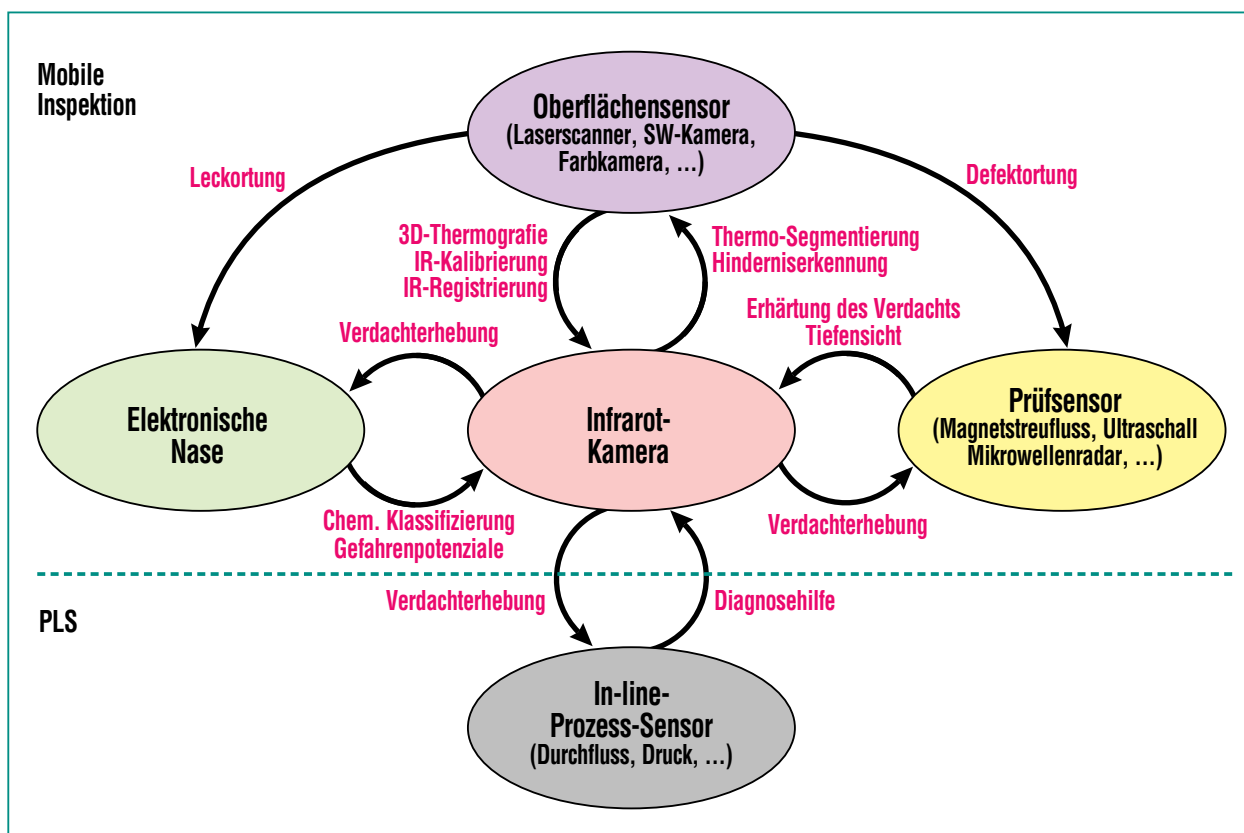


Abb. 9: Kooperation von Oberflächen-, Wärme-, chemischen und Materialprüfsensoren bei der Störungserkennung und Diagnose.

Lokalisierung an natürlichen Landmarken erlaubt identische, vergleichbare IR-Bildausschnitte zu erfassen bzw. sie aufeinander abzubilden (zu registrieren). Wichtiger noch bei der Messung von Wärmestrahlung ist die Bestimmung des Emissionsgrades eines Objektes und der Hintergrundstrahlung. Für dieses schwierige Problem eröffnen sich bei bekannter Szenengeometrie (Oberflächennormalen!) neue Lösungsmöglichkeiten. Umgekehrt profitiert die Tiefenbildverarbeitung von den individuellen Temperaturprofilen, die Stränge verfahrenstechnischer Anlagen auszeichnen. Durch sie wird eine zuverlässigere und effizientere Objektsegmentierung und -erkennung möglich, als es das Tiefenbild allein mit seinem Labyrinth von Rohren und Kesseln erlaubt. Auch für die Erkennung temporä-

rer, dynamischer Hindernisse (z.B. vorbeilaufende Menschen) eignen sich IR-Bilder besser als Tiefen- oder Videobilder. Diese neuartige Fusion von Lasersensor und Infrarotkamera bezeichnen wir als *3D-Thermographie*.

Doch leistet IR-Thermographie allein wegen ihrer mangelnden Selektivität keine sinnvolle Zustandsbeurteilung. Selbst wenn Wärmedurchschläge an einem isolierten Rohr sichtbar werden, zeigen diese noch nicht, ob die Ummantelung oder der metallische Kern schadhaft ist, ob bereits Flüssigkeit oder Gas ausgetreten ist, um welche chemischen Substanzen es sich ggf. handelt und wie das Gefahrenpotential einzuschätzen ist (**Klassifizierung**). Letzteres können z.B. elektronische Nasen beurteilen.

Zur Eingrenzung und Erhärtung dienen auch Prüfsensoren, die einen Blick unter die Oberfläche erlauben (Ultraschall, Mikrowellenradar, Magnetstreulicht), ferner berührungslose Füllstands- und Durchfluss-Messungen oder Druckmesswerte von In-line-Sensoren. Welche dieser Inspektionssensoren zusammen den Kosten-Nutzen-optimalen „Werkzeugkasten“ ergeben, ist dabei noch offen. Die Sensitivität und die Selektivität, Einsatzvoraussetzungen (Materialeigenschaften), Kosten und Platzbedarf der Sensoren, die Fähigkeit Materialien zu durchdringen, Abstand und Anordnung zum Prüfobjekt und daraus erwachsende Zugänglichkeitsprobleme, sind dabei abzuwägen.

## Literatur

- [1] L.G.Shapiro, R.M.Haralick, *IEEE PAMI* 4(11), 1982, 595-602
- [2] F. Peters, M. Kasper, M. Eßling, E. von Puttkamer, *Autonome Mobile Systeme 2000*, 20.-21. Nov. 2000, Karlsruhe, 157-164
- [3] J.-H. Lee, G. Appenzeller, H. Hashimoto, *International Conference on Field and Service Robotics*, 8.-10. Dez. 1997, Canberra
- [4] E.Boyer, M.-O.Berger, *Int. Journal of Computer Vision* 22(3), 1997, 219-233
- [5] M.Soucy, D.Laurendeau, *IEEE PAMI* 17(4), 1995, 344-358
- [6] A.W. Fitzgibbon, D.W. Eggert, R. B. Fisher, *Computer-Aided Design* 29(4), 1997, 321-330
- [7] D. Fischer, *Dissertation, FernUniversität Hagen*, August 1999
- [8] D. Fischer, P. Kohlhepp, *IEEE Conference CVPR'2000*, Hilton Head, USA, 13.-15. Juni 2000, 405-412
- [9] A.D. Bailey, C. Fröhlich, *Numerisation 3D '99*, Paris, France, 19.-20. Mai 1999
- [10] W.E.L. Grimson, T. Lozano-Perez, *IEEE PAMI* 9(4), July 1987
- [11] X. Jiang, H. Bunke, *Dreidimensionales Computersehen*, Springer Verlag 1997
- [12] B.K.P. Horn, *J. Opt. Soc. Am.* 4(4), 1987, 629-642
- [13] P.J.Besl, D.N.McKay, *IEEE PAMI* 14(2), 1992, 239-256
- [14] *University of South Florida*, <http://marathon.csee.usf.edu/range/icons/Odet-cam-mot.html>
- [15] *BASF Deutschland*, <http://www.basf.de/de/corporate/environment/ub00/>, 2000
- [16] H.-B. Kuntze, D. Schmidt, H. Haffner, M. Loh, *NODIG '95*, Dresden, 19.-22. Sept. 1995, 367-374
- [17] J.H.J. Stalenhoef, J.A. de Raad, *Proc. 7th European Conference on Non-Destructive Testing*, Kopenhagen, 26.-29. Mai 1998
- [18] H. Willems, O.A. Barbian, A. Hugger, T. Klaus, M. Wittstock, *DGZfP NDT Conference Dresden*, 1997
- [19] P.Althainz, J. Goschnik, S.Ehrmann, H.J. Ache, *Sensors and Actuators B* (33), 1996, 72-76