

Messung einer konfigurationsbasierten Temperatur
granularer Packungen
Measurement of a configurational temperature of
granular media

Bachelor-Arbeit A. Döring

Version: August 25, 2009

Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der Dichtefluktuationen einer granularen Packung von Glaskugeln in einem fluidisierten Bett. Verschiedene Packungsdichten werden präpariert, indem die Kugeln durch einen definierten Flusspuls angehoben werden und wieder sedimentieren. Die Volumenfluktuationen werden als Funktion der stationären Dichte aufgenommen. Aus diesem Zusammenhang wird die Kompaktivität, eine temperaturartige Zustandsgröße nach Edwards und Oakeshott, ermittelt. Die Resultate bestätigen frühere Ergebnisse von Schröter, Goldman und Swinney an einem ähnlichen System.

abstract

The aim of this thesis is to study the density fluctuations of a granular packing of spheres in a fluidized bed. Different densities are prepared by fluidizing the beads with a well-defined flow pulse and then letting them sediment. The volume fluctuations are recorded as a function of the steady state packing density. From this dependence the compactivity, a temperature like state variable introduced by Edwards and Oakeshott, is determined. The results confirm earlier work by Schröter, Goldman and Swinney on a similar system.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretischer Hintergrund	3
2.1	Granulare Materie	3
2.2	Edwards Ansatz	3
3	Experimenteller Stand	7
4	Das Experiment	9
4.1	Das Nanotom	9
4.2	Der Aufbau	11
4.3	Temperaturkontrolle	16
4.4	Experimentelle Vorgehensweise	18
5	Auswertung	21
5.1	Höhenfluktuationen	21
5.2	Grauwerte	26
6	Diskussion	31
6.1	Höhenfluktuationen	31
6.2	Grauwerte	32
7	Ausblick	33
7.1	Verbesserungsmöglichkeiten für dieses Experiment	33
7.2	Weitere Möglichkeiten dieses Aufbaus	33
	Danksagung	35
	Literaturverzeichnis	37

1 Einleitung

Granulate begegnen uns häufig im Alltag, auch wenn sie kaum speziell wahrgenommen werden. Wer den Tag mit einem Müsli und einem Kaffee beginnt und eventuell eine Tablette einnimmt, hat bevor er zur Arbeit geht schon mit mehreren Granulaten zu tun gehabt, ganz zu schweigen von dem Untergrund des Hauses, in dem er lebt. Und dennoch wird er kaum etwas über das Verhalten dieser Granulate wissen. Wieso steigen zum Beispiel die Nüsse im Müsli nach oben, wenn man es schüttelt? Wie viel Kaffeepulver kann man auf einen Löffel häufen, ohne das es herunterfällt? Die Beantwortung dieser Fragen fällt nicht nur einem Laien schwer, sondern auch dem Wissenschaftler, weil es noch keine vollständige Beschreibung granularer Systeme gibt.

Granulate gehören zu den Nichtgleichgewichts-Systemen und sind bis jetzt nicht mit einer statistischen Mechanik zu beschreiben. Gesucht ist eine Theorie, in der das System, ähnlich wie in der Gleichgewichtsthermodynamik, mit einer festen Anzahl direkt oder indirekt zugänglicher Größen vollständig beschrieben wird und daher Vorhersagen erlaubt. Diese Vorhersagen interessieren jedoch nicht nur denjenigen, der gerne möglichst viel Kaffee auf dem Löffel hat, sie könnten auch Leben retten. So kann es in mit Wasser gesättigten Granulaten unter Einfluss von äußeren Kräften, wie zum Beispiel Erdbeben, zu einer so genannten Erdverflüssigung kommen, wie es 1964 in Niigata passiert ist. Eine Vorhersage hätte vermutlich viele Leben retten können.



Abbildung 1: Erdverflüssigung in Niigata 1964

Ein Parameter der gesuchten Theorie, die Kompaktivität, die eine Analogie zur

thermodynamischen Temperatur darstellt, soll in dieser Arbeit untersucht werden. Ein "Thermometer" für diese Größe, das man nur in Kontakt mit dem untersuchten System bringen müsste, und dessen Kompaktivität sich spontan angleichen würde, gibt es leider nicht. Deshalb ist es nahe liegend, nach indirekteren Messmethoden zu suchen. In dieser Arbeit wird dafür eine Methode benutzt, die auf den Volumenschwankungen in einer Packung basiert.

Als Modellsystem dient eine Packung von kleinen Glaskugeln. Es können unterschiedlich dichte Packungen erzeugt werden, so dass das Gesamtvolumen wie eine thermodynamische Variable zu behandeln ist. Man erreicht diese Packungsunterschiede experimentell, indem die Kugeln in eine Flüssigkeit eingebettet werden. Durch genau kontrollierte Pumpstöße werden sie angehoben und setzen sich wieder. Nach einigen Pumpstößen stellt sich ein stationärer Zustand ein, der mit Röntgenstrahlen untersucht wird. In dieser Arbeit wird nur die Dichte der Packung beobachtet. Das Gerät ist aber bereits in der Lage die Position der einzelnen Kugeln zu bestimmen. Dies wird die Grundlage für nachfolgende Experimente sein.

2 Theoretischer Hintergrund

2.1 Granulare Materie

Granulate bestehen aus einer Ansammlung von makroskopischen Festkörpern, die nur über Kontaktkräfte wechselwirken und weder Brownscher Bewegung noch Quanteneffekten unterliegen. So kann granulare Materie Korndurchmesser von ca. $100\ \mu\text{m}$ haben, wie zum Beispiel feiner Sand, oder bis zu $100\ \text{km}$, wie zum Beispiel Teile der Saturnringe. Es handelt sich bei ihr nicht um eine thermodynamische Phase, die durch spontanes Streben ins Gleichgewicht präpariert werden kann. So kann sich Sand am gleichen Strand an manchen Stellen so fest verhalten, dass man über ihn gehen kann und an anderen “flüssig“ wie Treibsand. Trotzdem kann man ein System aus Granulat reproduzierbar herstellen, auch wenn nur eine Anzahl von Parametern betrachtet wird. Die Packungsdichten, die durch Vorgänge gewonnen werden, die nicht auf einzelne Teilchen, sondern auf das Gesamtsystem wirken, liegen für gleich große dreidimensionale Kugeln zwischen $\Phi = 0.55(1)$, dem so genannten ‘Random loose Packing’(RLP) [7] und $\Phi = 0.64(7)$ dem ‘Random close Packing’(RCP)[6]. Beide Packungsdichten sind statistisch bestimmt, die Werte sind also eventuell noch Änderungen unterworfen.

Die Temperatur nimmt keinen Einfluss auf das Verhalten des Systems, wie man an folgender Größenordnungsabschätzung sehen kann.

Die thermische Energie, die nötig wäre um ein Teilchen mit Durchmesser $d = 100\ \mu\text{m}$ und Dichte $\rho = 2\ \text{g}/\text{cm}^3$ um seinen eigenen Durchmesser anzuheben beträgt:

$$k_B T = E_{pot} = mgd = \rho V g d \approx 10^{-11}\ \text{J} \quad \Rightarrow T \approx 10^{12}\ \text{K}$$

2.2 Edwards Ansatz

Ein viel versprechender Ansatz im Bestreben granulare Medien besser zu verstehen ist, für sie eine Theorie nach dem Muster der klassischen statistischen Mechanik des Gleichgewichts zu entwickeln. Hätte man diese, so könnte man, wie in der klassischen Thermodynamik, aus einigen relevanten Kenngrößen auf das Verhalten des gesamten Systems schließen.

In ihrer Publikation “Theory of Powders” stellen Edwards und Oakeshott [1] eine

Analogie zwischen der klassischen statistischen Mechanik und dem Verhalten von statischen Granulaten her. In dieser Analogie werden die aus der klassischen statistischen Mechanik bekannten Mikrozustände mit den möglichen stabilen Konfigurationen der Körner verknüpft und so, wie im klassischen Fall, eine Zustandssumme und eine Entropie gebildet. Mechanisch stabil heißt hierbei, dass für jedes Korn gilt:

- Die Summe der Kontaktkräfte ist gleich dem Gewicht.
- Die Summe aller Drehmomente ist Null.
- Die Coulombbedingung an jedem Kontakt ist erfüllt
- Es gibt Überlapp nur durch elastische Deformation und proportional zu den Kontaktkräften.

Diese Analogie wird nötig, weil im Granulat die klassische Temperatur keinen Einfluss auf die Konfiguration nimmt. Die statt der Energie gewählte extensive Größe ist das Volumen, das mit vielen unterschiedlichen Konfigurationen gebildet werden kann. Die hierzu konjugierte intensive Größe wird Kompaktivität X genannt und ist als $X = \frac{\partial V}{\partial S}$ definiert.

statistische Mechanik	Bedeutung	Granulate	Bedeutung
E	Energie	V	Volumen
S	Entropie	S	Entropie
k_B	gibt S Energieeinheiten	λ	gibt S Volumeneinheiten
$T = \frac{\partial E}{\partial S}$		$X = \frac{\partial V}{\partial S}$	Kompaktivität

Über diesen Ansatz kamen Nowak et al. [2] zu der Idee, die Kompaktivität aus den Volumenfluktuationen um das Volumen des stationären Zustands (V_{avg}) zu bestimmen. Über die oben gegebene Analogie kann mit E_{avg} als mittlere Gleichgewichtsenergie aus der bekannten Berechnung [5] für die spezifische Wärme

$$C_V = \frac{\partial E_{avg}}{\partial T} = \frac{\langle (E - E_{avg})^2 \rangle}{k_B T^2}$$

die folgende Gleichung für Granulate erlangt werden

$$C = \frac{\partial V_{avg}}{\partial X} = \frac{\langle (V - V_{avg})^2 \rangle}{\lambda X^2}.$$

Die hier auftauchenden Volumenfluktuationen sind experimentell zugänglich [4], so dass X durch numerische Integration gewonnen werden kann:

$$\frac{1}{\lambda X(V)} = \int_V^{V_{RLP}} \frac{1}{\langle (V - V_{avg})^2 \rangle} dV_{avg}, \quad (1)$$

wobei in dieser Formel bereits berücksichtigt wurde, dass $1/X(V_{RLP}) = 0$ gilt, die Kompaktivität der losesten möglichen Packung, die durch Zufallsprotokolle erreicht werden kann (RLP), unendlich ist. Dass dieser Ansatz auch unabhängig von der von Edwards und Oakeshott eingeführten Analogie hergeleitet werden kann, wird in [3] gezeigt. Hier zeigen Bertin et al., dass sich aus dem thermodynamischer Formalismus für stationäre Zustände stochastischer Systeme, der dort entwickelt wird, eben diese Gl. 1 herleiten lässt.

3 Experimenteller Stand

Um also einen experimentellen Zugang zur Kompaktivität mit Hilfe von Gl.1 zu erhalten, ist es nötig, sowohl des Volumen das stationären Zustands einzustellen, als auch die Volumenfluktuationen genau vermessen zu können. Eine Methode um das stationäre Volumen einzustellen ist die des fluidisierten Betts. Hierbei werden die Sandkörner zunächst durch eine möglichst gleichmäßige Strömung emporgehoben, um dann wieder zu sedimentieren. Bei diesem Verfahren hängt die resultierende Packungsdichte von der Flussrate des fluidisierenden Mediums, wie in [4] gezeigt ab. Je größer die Flussrate ist, desto loser wird die Packung, wobei das System bei großen Flussraten Sättigungsverhalten zeigt (Abb. 2).

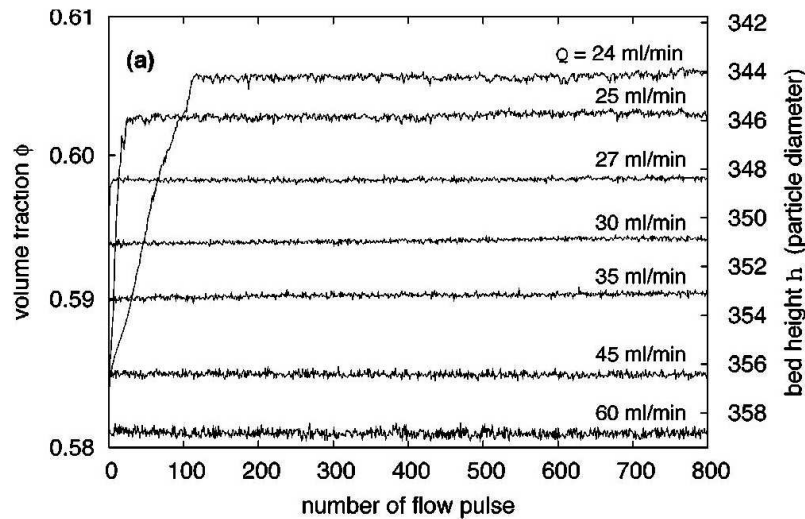


Abbildung 2: Veränderung der Packungsdichte bei unterschiedlichen Flussraten [4]

Die Fluktuationen um einen stationären Zustand zeigen hier ein Minimum bei mittleren eingestellten Packungsdichten und lassen sich durch eine Parabel annähern. Diese approximierte Funktion der Standardabweichungen kann als Grundlage für zur Berechnung der Kompaktivität dienen. Die aus Gl.1 abgeleitete Gleichung

$$\frac{1}{X(\Phi)} = \frac{\lambda\rho}{m} \int_{\Phi}^{\Phi_{RLP}} \left(\frac{\Phi'}{\sigma_{\Phi'}} \right)^2 d\Phi' \quad (2)$$

kann somit numerisch gelöst werden, wenn die approximierte Funktion, die Masse m

und die Dichte ρ der Teilchen zugrunde gelegt werden. Die Volumenfluktuationen sind im ersten Panel und die Kompaktivität ist im letzten Panel von Abb. 3 als Funktion der Packungsdichte dargestellt.

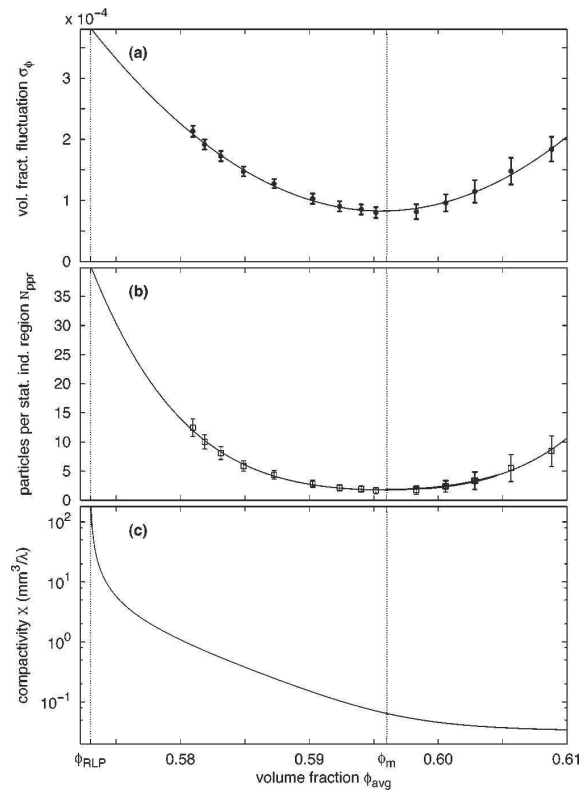


Abbildung 3: Volumenfluktuationen und Kompaktivität aus[4]

4 Das Experiment

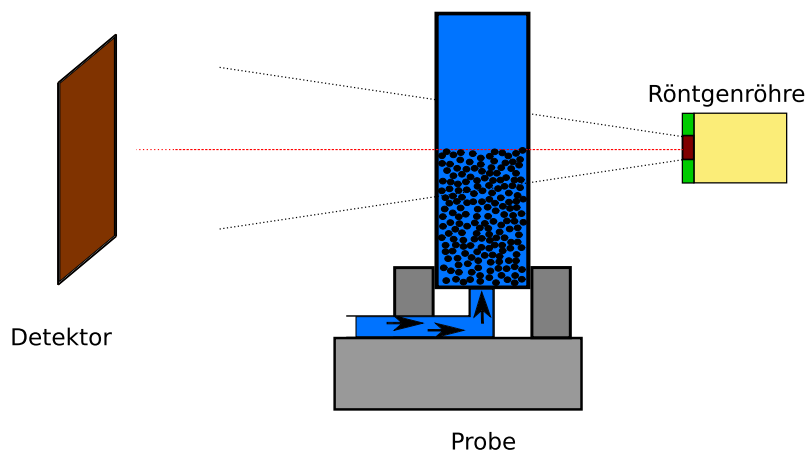


Abbildung 4: Aufbau des Nanotoms

Der Mechanismus, der in diesem Experiment genutzt wird, ist der des fluidisierten Betts (siehe Schema Abb. 4. Hierbei wird eine Packung von Glaskugeln, die sich unter Wasser befindet, durch einen definierten Flusspuls emporgehoben und setzt sich danach wieder. Die hierdurch eingestellten Packungen werden mit Hilfe des Nanotoms, einem Röntgentomographen der Firma Phoenix|x-ray analysiert. Aus den einzelnen Bildern wird die Höhe und somit die momentane Packungsdichte ermittelt. So sollen die Ergebnisse für die Volumenfluktuationen aus [4] bestätigt werden und ebenfalls eine Berechnung der Kompaktivität durchgeführt werden. Zusätzlich soll geprüft werden, ob die Grauwerte der Röntgentransmission mit der Packungsdichte korreliert sind.

4.1 Das Nanotom

Das Nanotom, in dem die granulare Probe untersucht werden soll, ist ein Computertomographiesystem. Dieses System bietet die Möglichkeit eine Probe einzuspannen, zu drehen und bei jedem Winkelschritt Projektionen der Probe mit Röntgenstrahlung

aufzunehmen. Aus diesen einzelnen Bilder kann dann ein dreidimensionales Volumen errechnet werden. Die benutzte Anode ist aus Wolfram, womit sie sich besser zum Untersuchen von metallischen als von organischen Proben eignet.

Der Probenstisch ist druckluftgelagert und lässt sich mit unterschiedlichen Spannbacken bestücken, wobei der maximale einspannbare Durchmesser 7.5 cm ist. Der Detektor besteht aus 2304x2304 Pixeln und lässt sich in x Richtung verschieben, sodass es möglich ist das dreifache an Breite aufzunehmen. Sowohl der Detektor als auch der Probenstisch sind entlang der z-Achse zu bewegen, sodass sich auch unterschiedliche Vergrößerungen einstellen lassen.

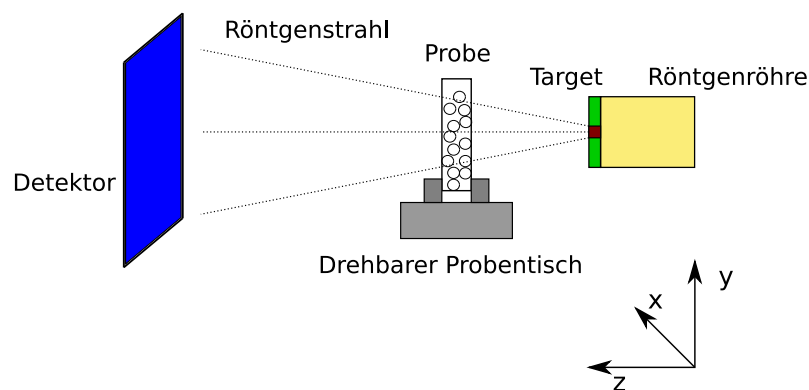


Abbildung 5: Orientierung der Koordinaten (s. Text)

Um ein gutes Bild zu erhalten, muss im Allgemeinen ein großer Bereich an Grauwerten der Röntgentransmission vorliegen. Hierzu müssen durch die jeweilige Probe noch genug Photonen durchdringen um am Detektor ein Signal auszulösen. Um eine ausreichend große Intensität zu erhalten, können verschiedene Parameter variiert werden.

- Die Spannung lässt sich von 10 – 180 kV einstellen
- Die Stromstärke kann von 5 – 145 μA variiert werden
- Die Größe des 'Fokusspots' lässt sich verstellen
- Der Abstand von der Probe zur Röhre kann variiert werden

- Der Abstand von der Probe zum Detektor kann variiert werden
- Die Belichtungszeit kann im Bereich von 0.5 – 6 Sekunden eingestellt werden

Es ist mit diesem Gerät möglich sowohl eine Serie von Radiogrammen, also Bildern ohne Rotation des Probestisches, als auch Tomogramme, also eine Bildserie über 360°, aufzunehmen. Bei beiden Verfahren ist das Detektorrauschen ein großer Störfaktor, der eine automatische Bildanalyse erheblich erschweren kann. Um das Rauschen und andere Komplikationen zu vermeiden, sollten folgende Schritte beachtet werden.

- Die Anzahl der Average-Bilder, d.h. Bilder, die intern gemittelt werden, bevor sie gespeichert werden, kann erhöht werden
- Die Anzahl der Skipbilder, d.h. Bilder, die nicht gespeichert werden, sodass Spuren von vorhergehenden Bildern von der Fluoreszenzschicht des Detektor verschwinden können, kann erhöht werden
- Eine Erhöhung der Anzahl der Rotationsschritte, die während eines Tomogramms gemacht werden, verringert die Rekonstruktionsartefakte
- Gute Kalibrierungsbilder verbessern das Ergebnis erheblich
- Der hellste Bereich konstanten Grauwertes sollte zu Kalibrierungszwecken auf dem Bild zu sehen sein

Ein großes Problem bei diesen Optimierungen ist, dass das Bild je besser es werden soll umso länger dauert und es in dieser Zeit zu thermischer Drift oder Gerätefehlern kommen kann, welche das Auswerten der Daten wieder erschweren. Außerdem wird das Filament bei höheren Stromstärken natürlich stärker belastet, sodass es zu höherem Verschleiß kommt.

4.2 Der Aufbau

Daraus, dass das gesamte Experiment im Nanotom stattfinden soll, ergeben sich folgende Anforderungen an das fluidisierte Bett:

- Das Gewicht auf dem drehbaren Probestisch des Nanotoms darf 1 kg nicht überschreiten

- Die gesamte Höhe des Aufbaus darf 35 cm nicht überschreiten und die zu beobachtende Region muss auf Höhe des Röntgenstrahls sein
- Wasser muss in ein rotierendes Behältnis eingebracht und daraus abgeführt werden, wobei kein Leck entstehen darf
- Der Aufbau muss sich auseinander nehmen lassen, um Reinigung und Befüllung zu ermöglichen
- Die Röhre muss rundlaufen und eingespannt werden können
- Der Durchmesser des gesamten Aufbaus ist auf 12 cm begrenzt
- Die Röhre muss aus einem Material mit geringem Absorptionskoeffizienten im Röntgenbereich sein

Diese Bedingungen werden mit folgendem Aufbau (s. Abb. 6) gelöst: (1) Die Wasser Zu- und Ableitung erfolgt über eine Drehdurchführung, deren oberer Teil raumfest aufgehängt wird. Das Rotieren des unteren Teils der Durchführung wird über eine Edelstahlkappe (2) ermöglicht. Diese Kappe ist über seitlich greifende Rändelschrauben an der runden Plexiglasröhre (Innendurchmesser 31.2 mm) befestigt und mehrfach durchbrochen, sodass Wasser austreten und in das umliegende Reservoir (3) strömen kann. Das Reservoir hat ein Fassungsvermögen von etwa 260 ml. In ihm befindet sich ein T-Stück (4), an dem drei Schläuche angebracht sind. Der erste Schlauch führt zur Drehdurchführung und fungiert als Zu- und Ableitung, der zweite endet im Reservoir und ist so mit einem Ventil versehen, dass das Wasser nur eingesogen werden kann. Die dritte Leitung führt zum unteren Ende des Aufbaus und ist mit einem Ventil versehen, durch das das Wasser nur in Richtung der Röhre fließen kann. Aufgrund des geringen zur Verfügung stehenden Platzes, wurden überwiegend Schläuche und Verbinder des für medizinische Zwecke entwickelten Luer-Lock Systems verwendet. Auf dem Weg zur Bodenplatte passiert die Leitung noch eine Edelstahlkappe, die in die Backen des drehbaren Tisches des Tomographen eingespannt werden kann. Der Boden der Röhre ist ausschraubbar, wodurch die zwei Distributoren (5) herausnehmbar sind. Die Distributoren sind jeweils aus 5 mm dickem porösen Messing, wodurch eine gleichmäßige Strömung innerhalb der Röhre erzeugt wird. Oberhalb der Distributoren befindet sich der Sand bzw. die Glaskugeln, die mit dem Röntgenstrahl, dessen Mittellinie bei (6) verläuft

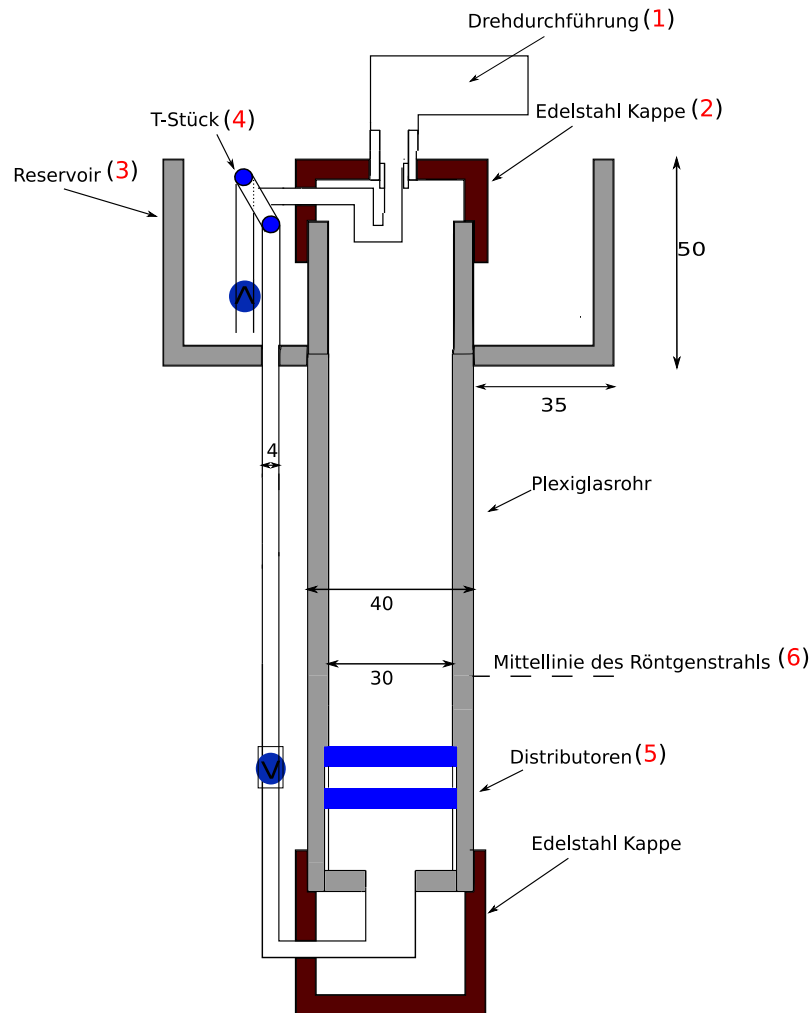


Abbildung 6: Aufbau des fluidisierten Betts

untersucht werden.

Um den Aufbau in das Nanotom einbauen zu können, ohne dass die zulässige Maximalbelastung für den Probenstisch überschritten wird, ist am oberen, raumfesten Teil der Röhre eine Feder angebracht. Diese Feder kann in einen im Nanotom montierten Ausleger eingehängt werden und je nach Stellung bis zu allem Gewicht vom Probenstisch nehmen. Um das System vor Fehlbedienung zu schützen, wurde außerdem ein Endschalteradapter gebaut, der die Endschalter des Systems anfährt, bevor

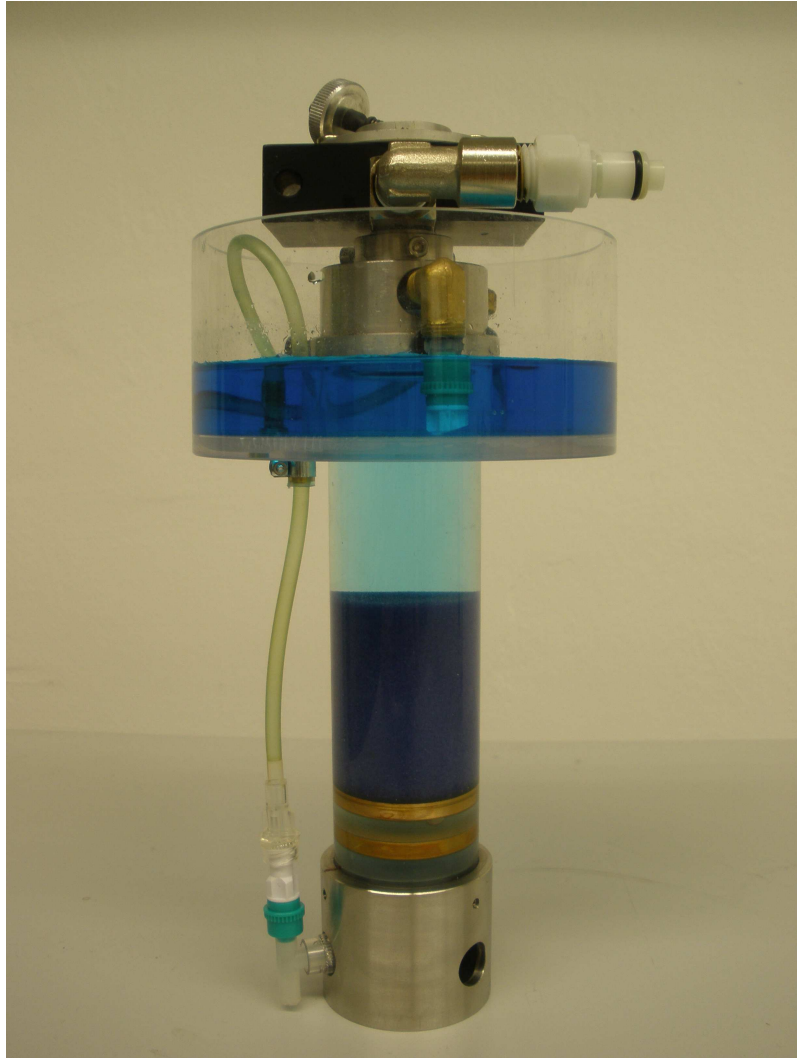


Abbildung 7: Aufbau des fluidisierten Betts

die Röhre an der Decke anstößt.

Die Wasserzuführung ist so aufgebaut, dass der größte Teil des Wassers außerhalb des Nanotoms ist und von dort mit Spritzenpumpen eingebracht werden kann. Die Zuleitung in das Nanotom erfolgt über einen recht steifen Schlauch ¹, wodurch er sich nicht in den Bereich des Röntgenstrahls verschiebt und auch genug Steifigkeit

¹DIN 73378 8x1

besitzt, um den raumfesten Teil der Drehdurchführung nicht zu stark zu belasten. Das verwendete Wasser wurde entgast und mit Antialgenmittel ² behandelt.

Das hier verwendete Granulat besteht aus Glaskugeln mit einem Durchmesser von $265 \pm 15 \mu\text{m}$ und einer Dichte von $2.5 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$. Das eingefüllte Gewicht der Glaskugeln beträgt 60.2 g. Die verwendete Röhre hat also einen Durchmesser von 120 Kugeldurchmessern, was ausreichen sollte um Randeffekte zu vernachlässigen.

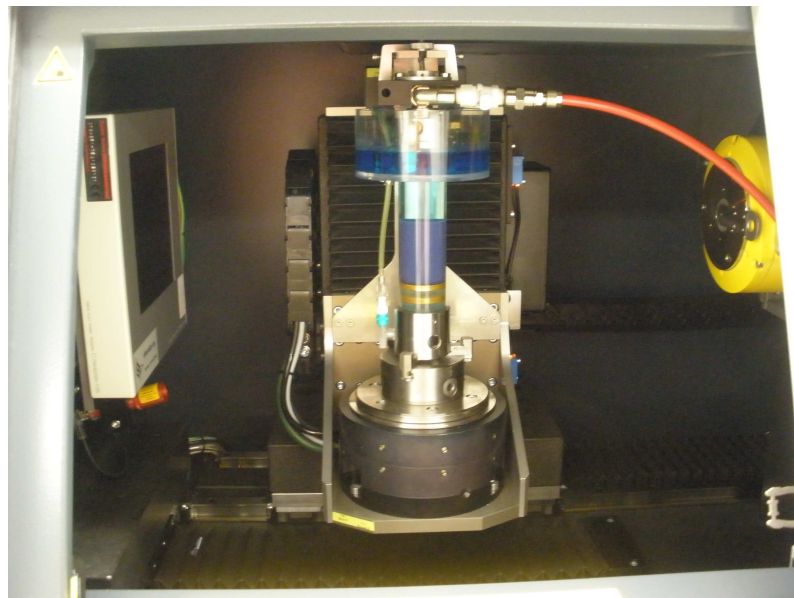


Abbildung 8: Das fluidisierte Bett im Nanotom

Der Ablauf der Aufnahme eines Messbildes läuft wie folgt: Eine Pumpstoß der Spritzenpumpe drückt das Wasser durch die Drehdurchführung, dann über das T-Stück in die Röhre und fluidisiert die Glaskugeln, hebt sie also so an, dass die Schwerkraft durch Auftrieb und Stokesreibung kompensiert ist. Für die minimale Flussgeschwindigkeit v gilt:

$$F_{Viskos} = F_{Stokes} f(\Phi) = F_{Gewicht} - F_{Auftrieb}$$

²AQUA Resist von VWR international

$$\begin{aligned}
f(\Phi)6\pi\eta v r_B &= \underbrace{\frac{4}{3}\pi r_B^3 \rho_B g}_{V_B} - \underbrace{\frac{4}{3}\pi r_B^3 \rho_F g}_{V_B} \\
\Rightarrow v &= r_B^2 \frac{2g(\rho_B - \rho_F)}{9\eta f(\Phi)} \\
\Rightarrow v &\sim r_B^2
\end{aligned}$$

Wobei r_B der Radius, V_B das Volumen und ρ_B die Dichte des Teilchens und ρ_F und η Dichte und Viskosität der Flüssigkeit sind. $f(\Phi)$ ist eine Funktion der Packungsdichte, die nötig wird, sobald mehr als ein Teilchen im Strom ist. Das Wasser läuft während des Pumpstoßes über den Rand der Röhre in das Reservoir. Ist die gewünschte Menge Wasser (maximal 200 ml) geflossen, zieht die Pumpe es über die andere Seite des T-Stücks wieder zurück. Während das Wasser abgesaugt wird, sedimentiert der Sand und es können sowohl Radiogramme als auch Tomogramme von der stationären Sandpackung aufgenommen werden.

Die Packungsdichten können über die Flussrate geregelt werden, die minimale Flussrate Q lässt sich aus der minimalen Geschwindigkeit und der Grundfläche A mit $Q = Av$ berechnen. Für einen Kugelradius von $r_B = 125 \mu\text{m}$, einer Glasdichte von $2.5 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ und Wasser bei Raumtemperatur als fluidisierendes Medium ergibt sich nach [4] eine Minimalgeschwindigkeit von $v_{125} = 0.042 \frac{\text{ml}}{\text{min mm}^2}$. Die minimalen Geschwindigkeiten für andere Kugelradien lassen sich nun durch $\frac{v_1}{r_1} = \frac{v_2}{r_2}$ berechnen. Für den Innendurchmesser von 30 mm ergeben sich daraus folgende Flussraten:

$r = 125 \mu\text{m}$	$r = 200 \mu\text{m}$	$r = 300 \mu\text{m}$
$Q = 29.5 \frac{\text{ml}}{\text{min}}$	$Q = 76.0 \frac{\text{ml}}{\text{min}}$	$Q = 171.0 \frac{\text{ml}}{\text{min}}$

Vor Anfang des eigentlichen Experiments musste also geprüft werden, ob die im Aufbau verwendeten Schläuche und Verbinder des Luer-Lock Systems den bei diesen Flussraten auftretenden Drücken dauerhaft standhalten können.

4.3 Temperaturkontrolle

Da eine einzelne Messung bis zu einem Tag dauern kann und sich schon kleine Änderungen der Temperatur auf die Packungsdichte auswirken können (für größere

Viskositäten ist die Minimalgeschwindigkeit, die zum Fluidisieren benötigt wird geringer [8]), ist es wichtig diese möglichst konstant zu halten. Um den Temperaturverlauf beobachten zu können, wird ein Pt100 Temperaturfühler der Genauigkeitsklasse 1/10 DIN und ein von der institutseigenen Elektronikwerkstatt gefertigter Vorverstärker verwendet. Der Vorverstärker selbst kann im Nanotom untergebracht werden, sodass er möglichst nah am Pt100 ist. Die zugehörige Stromversorgung geschieht über ein Netzteil, das sich außerhalb des Nanotoms befindet, sodass es zu möglichst wenig Störungen aufgrund der Netzspannung auftreten können. Das Auslesen der Spannungswerte geschieht über eine 'Data acquisition card' der Firma 'National instruments' mit einem selbst geschriebenen 'Labview' Programm.

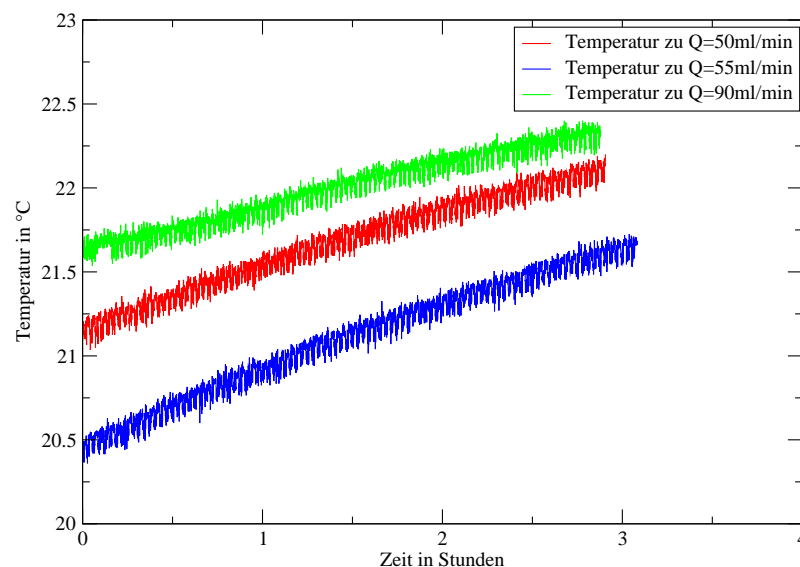


Abbildung 9: Anstieg der Temperatur im Nanotom im Verlauf von Messungen

Da die einzige Klimatisierung des Versuchs durch eine im Labor (nicht im Nanotom) angebrachte Kühlung erfolgte, wurden mehrere Messungen bei unterschiedlichen Einstellungen der Kühlboxen vorgenommen um zu ermitteln, wann die Temperatur im Nanotom am gleichmäßigsten ist. Häufige Fehlfunktionen der Klimatisierung erschwerten dies jedoch erheblich. Außerdem erreichte die Temperatur im Nanotom während einer Messung nie einen stationären Bereich, da die Röntgenröhre als Heizung wirkte und die Tür des Geräts während einer Messung natürlich geschlossen

sein muss. Die Temperaturdrift über 3 Stunden betrug typischerweise $\approx 1^\circ\text{C}$. Der Temperaturverlauf während einzelner Messreihen ist in Abb. 9 exemplarisch dargestellt.

4.4 Experimentelle Vorgehensweise

Für eine Messreihe wird immer zuerst mit einem Pumpstoß definierter Flussrate das Bett fluidisiert und dann ein Radiogramm mit dem Nanotom aufgenommen. Während das eigentliche Bild mit 30 gemittelten Bildern aufgenommen wird, wird das Wasser aus dem Reservoir abgepumpt. Es werden 4 Messreihen mit je 90 Bildern und unterschiedlichen Flussraten aufgenommen. Für jede Messreihe werden je nach Packungsdichte vor dem Beginn der Messung eine unterschiedliche Anzahl (zwischen 10 und 50) von Pumpstößen durchgeführt, um den stationären Zustand zu erreichen. Während jeder Messreihe wird die Temperatur im Nanotom gemessen.

Die Radiogramme werden so aufgenommen, dass die Oberfläche des Bettes etwa auf der gleichen Höhe wie die Mittellinie des Strahls ist, sodass die Höhe des Bettes in der Auswertung möglichst fehlerfrei bestimmt werden kann. Außerdem wird durch diese Einstellung eine Fläche mit einem Referenzgrauwert aufgenommen, sodass die momentanen Schwankungen der Intensität der Röntgenröhre herausnormiert werden können. Die Wasserzuleitung an der Seite des Wasserturms wird vor Beginn der Messung aus dem Strahl gedreht.

Um die tatsächliche Betthöhe bestimmen zu können, wird eine Vormessung vorgenommen, bei der ein gekürztes Stahllineal in die Röhre gestellt wird. Hierdurch kann, wenn die sonstigen Einstellungen nicht verändert werden, die Höhe des Bettes in Pixeln in die Höhe des Bettes in mm umgerechnet werden, da die Maßstriche des Stahllineals auf dem Detektor gut aufzulösen sind.

Die Bildaufnahme wird automatisch vom Nanotom vorgenommen, während die Pumpstöße von Hand eingeleitet werden, sobald die Bilddaten vom Nanotom im Rechner angekommen sind. Die Parameter der Röntgenröhre sind für alle Messreihen:

Stromstärke= $90\ \mu\text{A}$, Spannung=100 kV, Anzahl der Average-Bilder=30, Timing=1500 ms und Betriebs Modus(Mode)= 0. Der Probenstisch befindet sich

70 mm und der Detektor 240 mm von der Röhre entfernt.

Die Anzahl der Skipbilder und die y-Einstellung des Probenisches werden variiert. Für alle Flussraten werden 30 ml Wasser gepumpt und das Abpumpen geschieht gleichzeitig mit der Bildaufnahme. Über die Anzahl der Skipbilder lässt sich die Zeit, die für das Pumpen und Sedimentieren benötigt werden einstellen. Das Sedimentieren dauert bei hohen Flussraten länger, da die Kugeln weiter sinken müssen. Um diese Zeit einschätzen zu können, wurde vor Beginn der Messung die Probe über mehrere Flusspulse beobachtet. Die benötigte Zeit betrug nie mehr als 10 s, sicherheitshalber wurden jedoch immer mindestens 25 s und 5 s Reaktionszeit eingeplant. Zeiteinteilung für einen Flusspuls gestaltet sich wie folgt:

$\underbrace{\text{Reaktionszeit, Pumpen, Sedimentieren}}_{\text{Zeit für die Skipbilder}} \qquad \underbrace{\text{Bildaufnahme}}_{\text{Zeit für die Averagebilder}}$

Flussrate	Zeit für die Skipbilder	Zeit für den Pumpstoß	Zeit für das Sedimentieren
$Q = 40 \text{ ml/min}$	75 s	45 s	25 s
$Q = 50 \text{ ml/min}$	68 s	36 s	27 s
$Q = 55 \text{ ml/min}$	60 s	33 s	30 s
$Q = 90 \text{ ml/min}$	52 s	20 s	27 s

5 Auswertung

Es wurden vier Versuchsreihen aufgenommen, die sich durch die Flussraten der Pulse unterschieden. In den folgenden graphischen Darstellungen sind Daten dieser Reihen durch unterschiedliche Farben markiert:

$Q = 40 \text{ ml/min}$	$Q = 50 \text{ ml/min}$	$Q = 55 \text{ ml/min}$	$Q = 90 \text{ ml/min}$
schwarz	rot	blau	grün

5.1 Höhenfluktuationen

Die Höhe des Betts wird für jedes Bild ermittelt, indem Spalte für Spalte die Pixelposition ermittelt wird, deren Grauwert auf der Hälfte zwischen dem höchsten und dem niedrigsten Grauwert in dieser Spalte liegt. Diese Auswertung erfolgt von der 200. bis zur 2100. Spalte, sodass die Wände der Röhre ausgeblendet werden. Von diesen Höhen der Spalten wird der Mittelwert gebildet. Dieser Wert H_{Pixel} wird dann mit Hilfe der Kalibrierungsbilder in die Höhe H_{mm} in Millimetern umgerechnet. Hierbei wird auch die genaue Einstellung des Probenstrisches y beachtet (siehe Abb. 10). Das Kalibrierungsbild wird bei $y = 46 \text{ mm}$ aufgenommen. Auf ihm entspricht 55 mm dem Pixel x-Wert 1226 und 60 mm dem

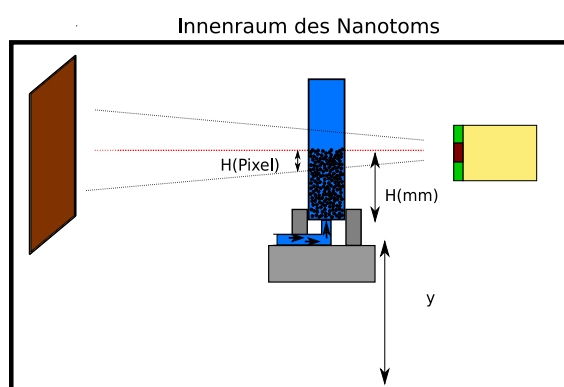


Abbildung 10: Skizze zur Umrechnung der Höhe von Pixeln auf absolute Maße

Pixel x-Wert 1400. Ein Millimeter entspricht in diesem Bereich also 64 Pixel.

Für die Höhe in Millimetern gilt also:

$$H_{mm} = 55 + (46 - y) + (H_{Pixel} - 1226)/64$$

Um den Fehler der Höhe abzuschätzen, werden 13 Bilder ohne weitere Flusspulse aufgenommen. Die Standardabweichung der Höhe dieser 13 Bilder beträgt $\sigma = 0.007mm$

Diese Ergebnisse sind in Abb. 11 aufgetragen. Es stellt sich heraus, dass alle Messreihen einen Trend zu loser Packungen haben. Alle Datensätze werden also um die lineare Regressionsgerade korrigiert. Die Ergebnisse hierfür sind in Abb. 12 dargestellt.

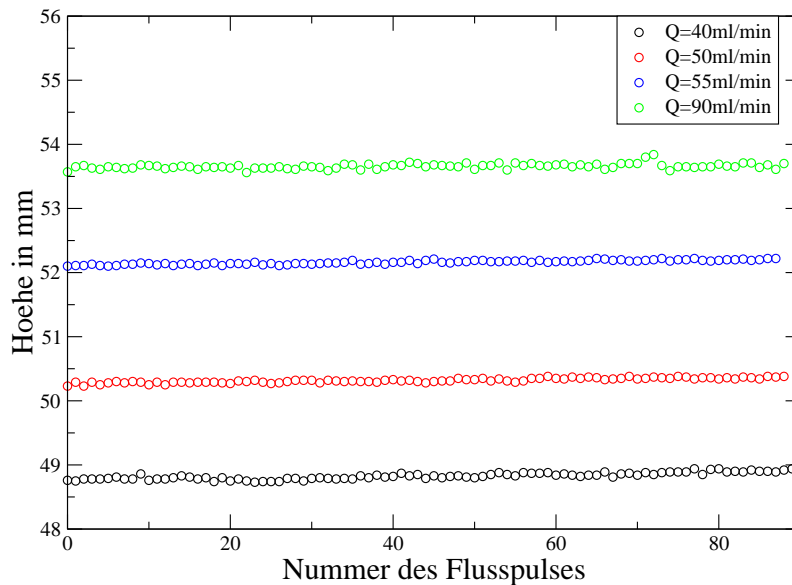


Abbildung 11: Höhen aufgetragen über der Nummer des Pulses.

Aus diesen Höhen kann nun die Packungsdichte der Glaskugeln bestimmt werden. Hierfür muss das genaue Gewicht der Packung M bekannt sein, in der Aufbauphase wurden jedoch einige Kugeln von emporsteigenden Luftblasen aus der Röhre in das Reservoir gespült. Ich nehme im Folgenden an, dass sich von den ursprünglichen 60.2 g bei Beginn der Messung noch $59 \pm 0.5 g$ in der Röhre befanden. Diese Abschätzung ist plausibel, weil nach Ende der Messungen aus dem Reservoir 0.53g

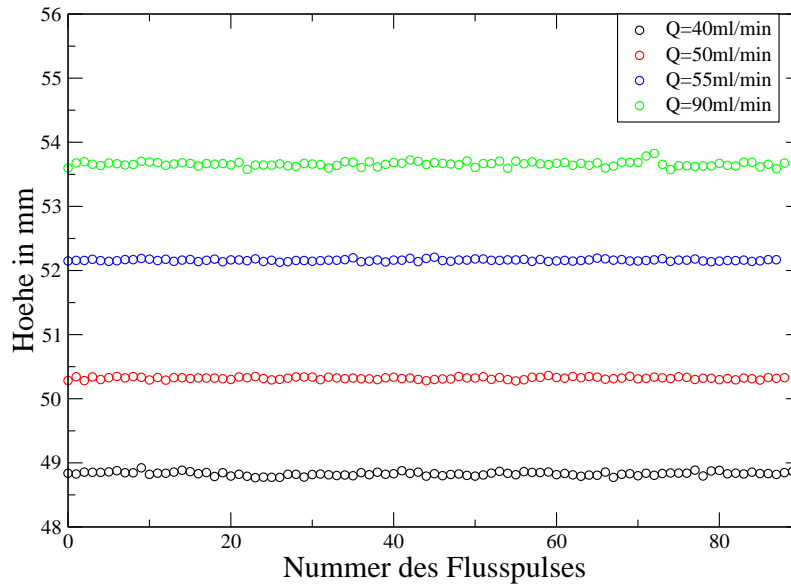


Abbildung 12: Um die Regressionsgeradensteigung korrigierte Höhen des Betts

Kugeln herausgeholt werden konnten. Die Kugeln in der Kappe und die, die beim zweimaligen Ausleeren des Reservoirs verloren gingen, werden auf noch einmal die gleiche Menge geschätzt. Die Dichte $\rho = 2.5 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ der Kugeln und der Radius der Röhre $r = 1.56 \pm 0.05 \text{ cm}$ sind bekannt. Aus diesen Angaben lässt sich nun die Packungsdichte Φ bestimmen.

$$\Phi = \frac{M}{\rho r^2 \pi H} \quad (3)$$

Für die verschiedenen Flussraten ergeben sich folgende mittlere Packungsdichten mit zugehörigen Fehlern aus Fehlerfortpflanzung:

$Q = 40 \text{ ml/min}$	$Q = 50 \text{ ml/min}$	$Q = 55 \text{ ml/min}$	$Q = 90 \text{ ml/min}$
$\Phi = 0.633 \pm 0.015$	$\Phi = 0.613 \pm 0.014$	$\Phi = 0.591 \pm 0.014$	$\Phi = 0.575 \pm 0.013$

Die Volumenfluktuationen sind in Abb. 13 dargestellt. Sie sind für die größten Flussraten am höchsten, nehmen dann zu mittleren Flussraten ab, um zu niedrigen Flussraten wieder zuzunehmen. Abb. 14 veranschaulicht die Verteilung der auftretenden Höhen. Für die weitere Auswertung werden die Fluktuationen durch die

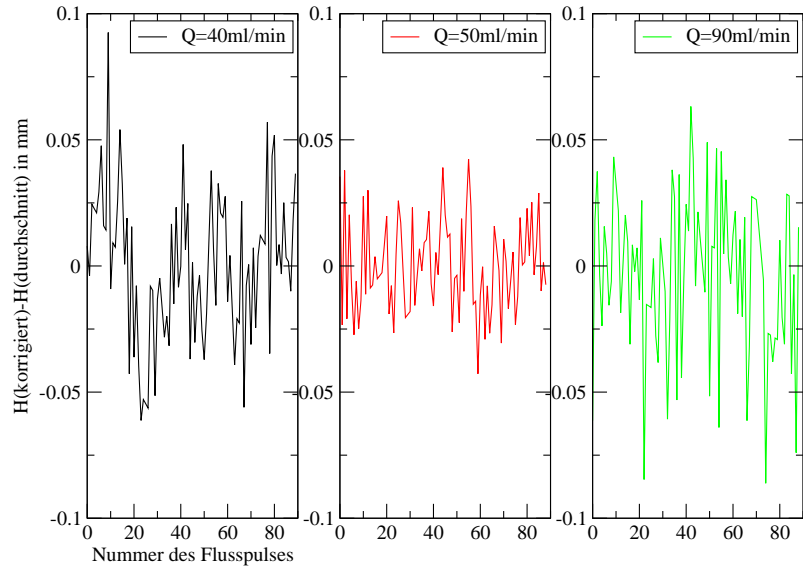


Abbildung 13: Fluktuationen der Höhe bei unterschiedlichen mittleren Flussraten

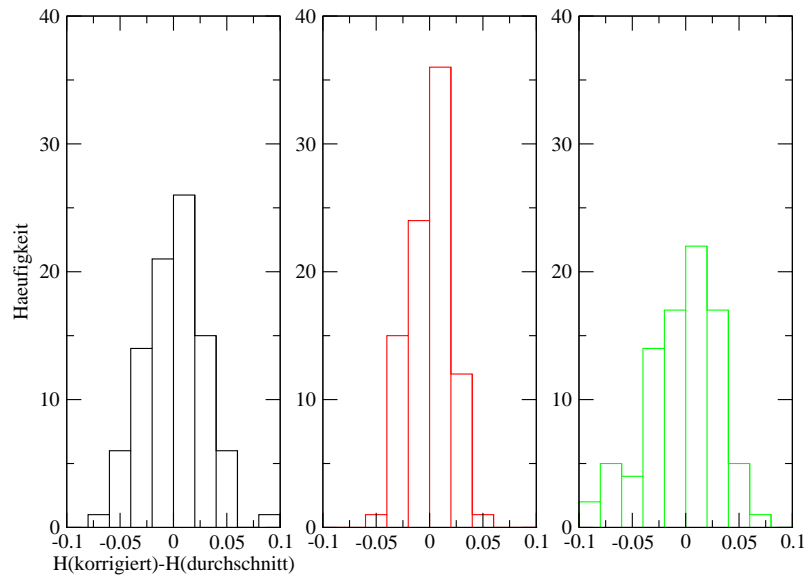


Abbildung 14: Höhenverteilungen. Die Breite dieser Verteilungen ist Grundlage der folgenden Auswertung.

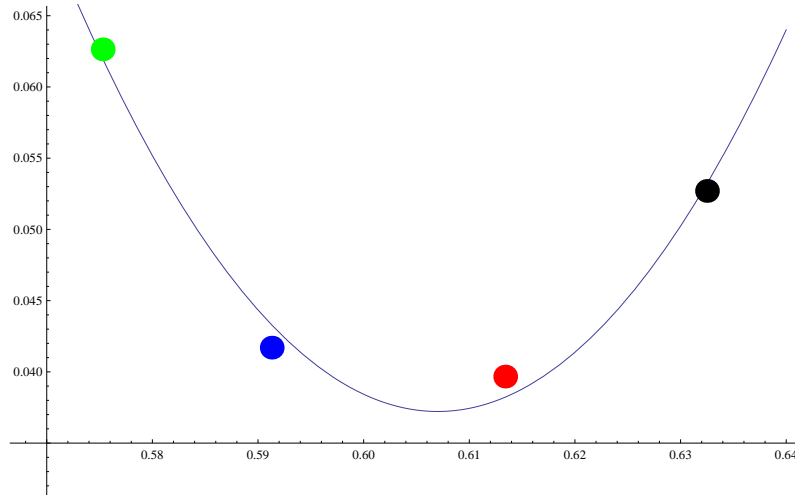


Abbildung 15: Höhenfluktuationen aufgetragen über der Packungsdichte. Die Parabel ist durch Minimierung der quadratischen Abweichung bestimmt

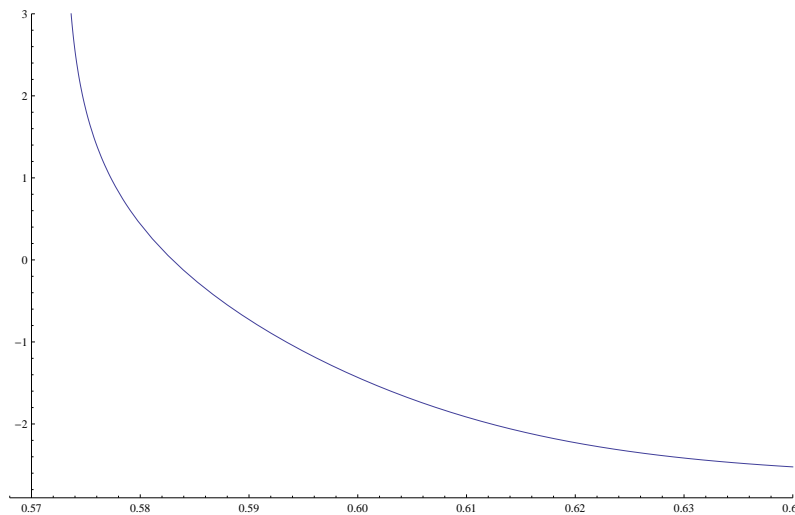


Abbildung 16: Kompaktivität über der Packungsdichte

Standardabweichung der gesamten Höhendaten ermittelt. Eine Regressionsparabel zu dem Verlauf der Fluktuationen als Funktion der Packungsdichte ist in Abb. 15 dargestellt. Die Parabelform wurde gewählt, weil in [4] ebenfalls eine Parabel ge-

funden wurde. Die Lage des Minimums ist bei $\phi = 0.607$. Aus dem angepassten Verlauf lässt sich nach Gl. (1) der Verlauf der Kompaktivität durch numerische Integration gewinnen (Abb. 16). Dabei wurde die Integrationsgrenze $\phi_{RLP} = 0.573$ aus [4] übernommen.

5.2 Grauwerte

Die Grauwerte der Röntgenaufnahme stellen eine alternative Methode zur Bestimmung der Packungsdichte dar. Sie haben den Vorteil, dass mit ihnen auch Inhomogenitäten im Innern der Packung zu erkennen seien sollten. Es könnten damit auch Packungen untersucht werden, deren Oberfläche nicht gut sichtbar ist oder die starke Oberflächeneffekte aufweisen. Um diese Vorteile nutzen zu können, muss jedoch zunächst geprüft werden, ob die Grauwerte in ausreichendem Maße mit den Volumina der Packung korreliert sind.

Im Folgenden sollen also die Grauwerte der einzelnen Packungen bestimmt werden und in Bezug zur Höhe des Betts gesetzt werden. Da die Röntgenröhre Schwankungen in ihrer Intensität aufweist und diese sich in den Grauwerten der aufgenommenen Bildern niederschlägt, müssen die Bilder mit Hilfe einer Referenzfläche korrigiert werden. Dies geschieht, indem zunächst die mittleren Grauwerte auf Höhe der Packung (P) und dann die in der darüber liegenden freien Röhre (B) aufgenommen werden. Die hierfür ausgewählten Bereiche sind in Abb. 17 markiert; sie sind für alle Messreihen gleich.

Die Intensität I_P , die im Bereich der Packung am Detektor ankommt, ergibt sich aus der momentanen Intensität I_0 der Röntgenröhre und dem Absorptionsfaktor a_P der Probe als $I_P = I_0 a_P$. Entsprechend gilt für das Hintergrundfeld $I_B = I_0 a_B$. Damit ist der Quotient

$$I = I_P/I_B = a_P/a_B \quad (4)$$

von der schwankenden Größe I_0 unabhängig und, da a_B konstant ist, nur noch von a_P abhängig. Diese Intensität I wird der weiteren Auswertung zu Grunde gelegt. Die unkorrigierten und die korrigierten Ergebnisse sind in Abb. 18 und Abb. 19 aufgetragen.

Die korrigierten Grauwerte weisen eine geringe Steigung auf, ebenso wie die Höhenverläufe (vgl. Abb. 11). Um zu überprüfen, ob die Grauwerte der Röntgentransmission



Abbildung 17: Bereiche der Grauwert Aufnahme in einem Beispielbild(2304x2304 Pixel)

mit den Höhen der Packung korreliert sind, werden sie gegeneinander aufgetragen (Abb. 20). Innerhalb jeder Messreihe ergibt sich eine eher steile Regressionsgerade, wobei bei der Messreihe mit den stärksten Flussraten (grün) zwei Punkte deutlich herausfallen, was genau den Ausreißern in Abb. 19 entspricht. Ein Grund hierfür konnte im Nachhinein nicht ermittelt werden. Die Regressionsgerade der Grauwerte gegen die Höhen, über alle vier Messreihen genommen, hat eine deutlich geringere Steigung als die der einzelnen Messreihen.

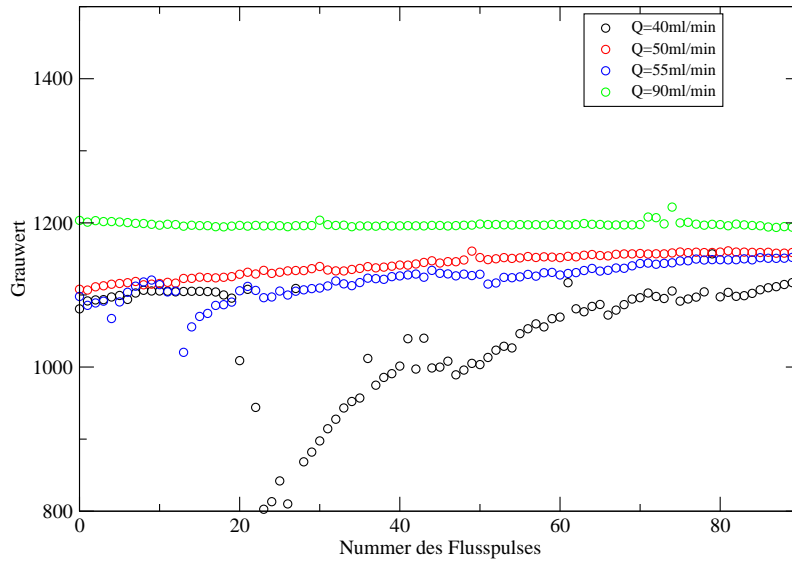


Abbildung 18: Unkorrigierte Grauwerte der vier Messreihen als Funktion der Flusspulse.

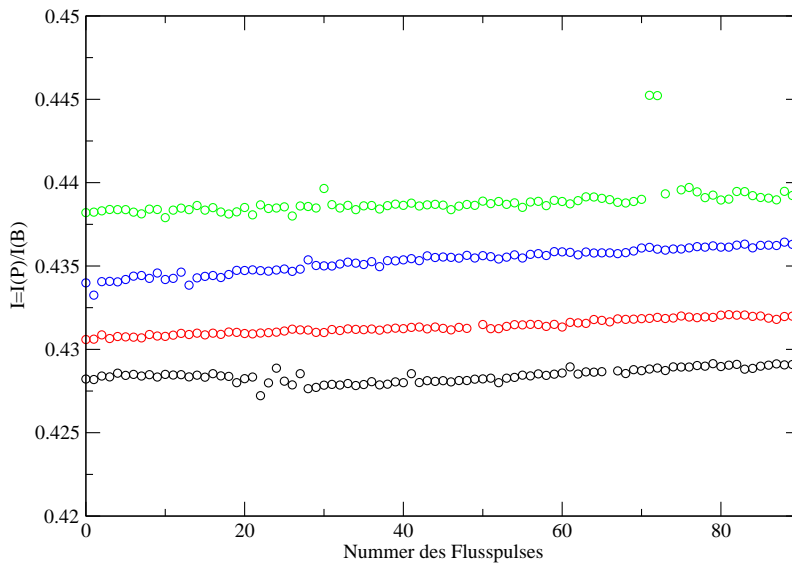


Abbildung 19: Die Daten aus Abb. 18, korrigiert nach Gl. (4).

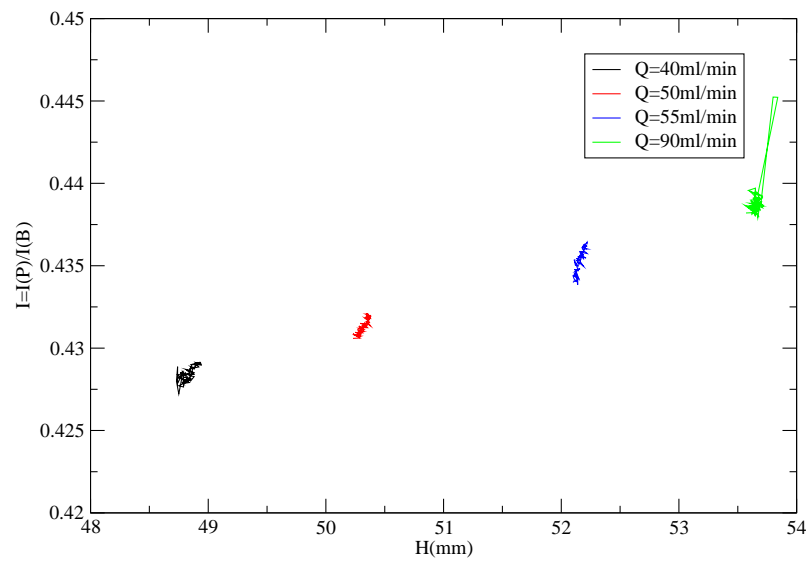


Abbildung 20: Höhe des Betts gegen Grauwerte

6 Diskussion

6.1 Höhenfluktuationen

Der Trend zu loseren Packungen, der bei allen Packungsdichten auftritt, konnte im Verlauf des Versuchs nicht erklärt werden. Der Temperaturanstieg von ca. 1°C im Verlauf der Messung sollte eigentlich ein gegenteiliges Verhalten hervorrufen, da die Viskosität von Wasser mit steigender Temperatur sinkt und bei sinkender Viskosität des fluidisierenden Mediums die Höhe der Packung steigen sollte (s. [8]).

Der qualitative Verlauf der Fluktuationen als Funktion der Packungsdichte bestätigt die Ergebnisse von [4], die in Abb. 3 dargestellt sind. In beiden Fällen ergibt sich ein guter Fit durch eine Parabel, wobei allerdings Genauigkeit und Anzahl der Messpunkte in [4] weit höher sind. Das Minimum der angepassten Parabel liegt mit $\Phi_m = 0.607$ bei einem höheren Wert als in [4] ($\Phi_m = 0.596$). Ein möglicher Grund ist ebenfalls dort diskutiert: Die Kugeln verlieren nach längerem Gebrauch in einem fluidisierten Bett an Oberflächen-Rauhigkeit, wodurch sich eine Verschiebung hin zu höheren Packungsdichten ergibt. Dies würde auch für das Experiment in dieser Arbeit zutreffen, da die Kugeln schon in einem anderen Experiment verwendet wurden. In diesem Sinne wird hier mit "alten Kugeln" gearbeitet.

Die Ergebnisse lassen sich jedoch sogar absolut und ohne jegliche freie Anpassungsparameter vergleichen: Nach Gleichung (3) gilt in linearer Näherung

$$\begin{aligned}\Phi(H) &= \frac{M}{\rho r^2 \pi H_0} - \frac{M}{\rho r^2 \pi H_0^2} (H - H_0), \quad \text{also} \\ \sigma_\Phi &= \frac{M}{\rho r^2 \pi H_0^2} \sigma_H,\end{aligned}\tag{5}$$

wobei H_0 eine typische Höhe ist. Die Konstante ist explizit bekannt. Entnimmt man der Graphik Abb. 3 die Parameter der Ausgleichsparabel und bringt sie in ein Diagramm erhält man Abb. 21. Unterschiede können daher kommen, dass die Volumenfluktuationen von der Masse der Probe abhängen, die in [4] verwendete Masse um einen Faktor 10 größer war.

Analog ließen sich die Kompaktivitätsdiagramme, also Abb. 16 und das unterste Panel in Abb. 3 vergleichen. Da dies jedoch abgeleitete Größen sind, ist der Vergleich weniger aussagekräftig und soll hier unterbleiben.

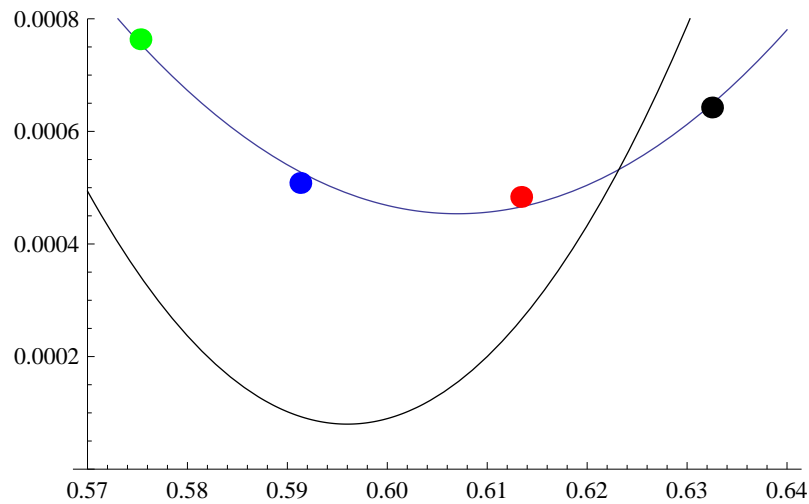


Abbildung 21: Absoluter Vergleich der Daten aus Abb. 15 mit dem ersten Panel in Abb. 3 aus [4] (schwarz)

6.2 Grauwerte

Der auffallende Unterschied in den Geradensteigungen innerhalb der einzelnen Messreihen und über alle Messreihen hinweg könnte ein Hinweis auf Inhomogenitäten innerhalb der Packungen sein. Die optische Messmethode ist nur sensitiv auf die Packungsdichte nahe der Oberfläche. Dagegen ist die Gesamthöhe proportional zur mittleren Packungsdichte über die gesamte Probe hinweg. Eine genauere Aufklärung kann hier nur die Untersuchung der tatsächlichen Dichteprofile als Funktion der Höhe bringen. Die Methode der Grauwerte hat jedoch auch Grenzen bei der Bestimmung der Dichte kleiner Gebiete: In der Probe waren erhebliche Anteile stärker absorbierender (evtl. metallischer) Kleinpartikel enthalten (siehe auch Abb. 22). Diese würden gerade in kleinen Bereichen große Fluktuationen der Absorption erzeugen.

7 Ausblick

7.1 Verbesserungsmöglichkeiten für dieses Experiment

Für weitergehende Arbeiten der gleichen Art müssen noch einige grundsätzliche Dinge verändert werden. So sollte zunächst eine *Temperaturkontrolle* des fluidisierenden Mediums realisiert werden. Die Temperaturmessung sollte in Zukunft direkt im fluidisierenden Medium geschehen und die recht langen Kabel des Pt100 sollten gekürzt werden, um das Rauschen zu minimieren. Zur *Kalibrierung der Grauwerte* wäre es besser zwei unterschiedlich absorbierende Gegenstände, von denen einer stärker und einer schwächer absorbiert als die Probe, in den Strahl zu bringen. So könnten Änderungen der Strahlintensität im Verlauf der Messung besser herausgerechnet werden. Die *Glaskugeln*, die in dem Experiment verwendet werden, sollten vor der nächsten Messreihe aussortiert werden, sodass keine stärker absorbierenden Partikel mehr enthalten sind. Im Nanotomsystem sollte eine automatische Erkennung von *defekten Pixeln* installiert werden, da vor allem blinkende Pixel das Ergebnis stark verfälschen können. Des Weiteren sollte die *Pumpensteuerung* automatisiert werden, sodass längere Messreihen realisiert werden können und so auch für kleinere Flussraten ein stationärer Zustand vermessen werden kann. Die Absorption des *Plexiglas-Zylinders* sollte vorab genau bestimmt werden, sodass auch Randbereiche des Zylinders mit genutzt werden können.

7.2 Weitere Möglichkeiten dieses Aufbaus

Die große Chance dieses Aufbaus liegt jedoch in der Möglichkeit, die genaue Lage der Kugeln zu erfassen, also Strukturen bis herunter auf die mikroskopische Ebene der Packung zu erfassen. Die bereits angesprochene Analyse der Inhomogenität der Absorption (Grauwerte) ist hier nur ein erster Schritt. Schon die zählerische Erfassung aus den Nanotom-Bildern bedeutet eine erhebliche Steigerung der Genauigkeit. Schließlich bietet sich die Erfassung der Statistik der Umgebungen der einzelnen Kugeln, etwa durch die Volumina ihrer Voronoi-Zellen an. Einen Ausblick auf diese erweiterten Möglichkeiten bietet der tomographisch rekonstruierte Schnitt Abb. 22.

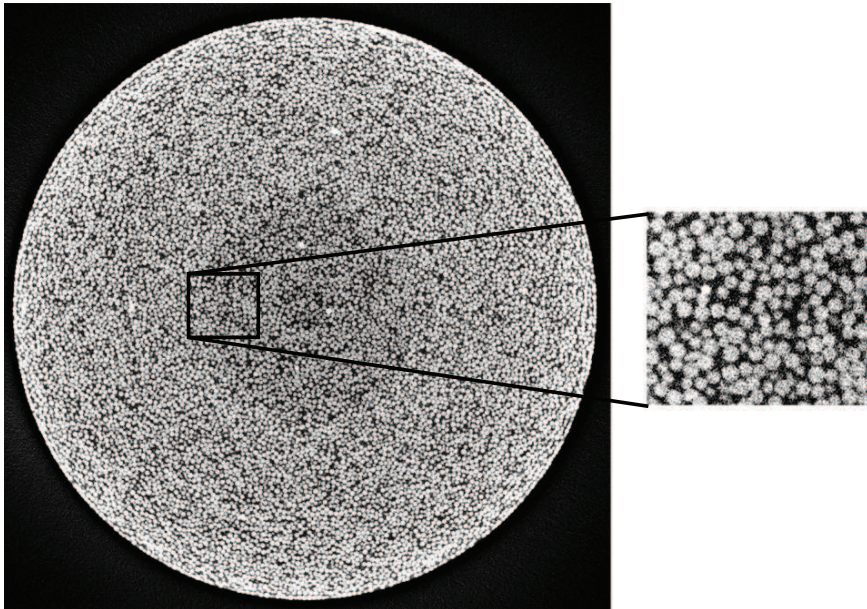


Abbildung 22: Tomographisch rekonstruiertes Bild eines horizontalen Schnittes durch die Kugelpackung.

Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. Stephan Herminghaus für die Erlaubnis diese Arbeit am Max-Planck Institut für Dynamik und Selbstorganisation durchführen zu dürfen und Frau Prof. Dr. Sarah Köster für die Übernahme des Zweitreferates. Herr Dr. Matthias Schröter hat mir in allen Phasen dieser Arbeit, von der Konzeption über viele technische Probleme, bis zur Endfassung immer wieder sehr engagiert geholfen. Mein Dank gilt weiterhin Herrn Udo Kraft, der den anspruchsvollen Aufbau mitgeplant und letztlich realisiert hat.

References

- [1] S. F. Edwards and R. B. S. Oakeshott, Theory of powders, *Physica A* **157**, 1080 (1989).
- [2] E. R. Nowak, J. B. Knight, E. Ben-Naim, H. M. Jaeger and S. R. Nagel: Density fluctuations in vibrated granular materials, *Phys. Rev. E* **57**, 1971 (1998).
- [3] E. Bertin, K. Martens, O. Dauchot and M. Droz: Intensive thermodynamic parameters in nonequilibrium systems, *Phys. Rev. E* **75**, 031120 (2007).
- [4] M. Schröter, D. I. Goldman and H. L. Swinney: Stationary state volume fluctuations in a granular medium, *Phys. Rev. E* **71**, 030301(R) (2005)
- [5] J. Honerkamp, *Statistical Physics* (Springer, Berlin, 1998)
- [6] G. D. Scott: Packing of Spheres, *Nature* **188** (1960)
- [7] M. Jerkins et al.: Onset of Mechanical Stability in Random Packings of Frictional Spheres, *PRL* **101** 018301 (2008)
- [8] G.Y. Onoda and E. G. Liniger: Random Loose Packings of Spheres and the Dilatancy Onset, *Phys. Rev. Lett.* **64** 2727 (1990)

