## 1 Einleitung

Einkristalle, Gläser und polykristalline Keramiken, die aus hochschmelzenden Materialien hergestellt werden, bilden heutzutage zusammen mit den Metallen, Halbleitermaterialien und Kunststoffen das Fundament der modernen Materialwissenschaft und -technologie. Dabei ist die Entwicklung innovativer nichtmetallischer Materialien mit einer hohen Verschleiß- und Bruchfestigkeit in den Vordergrund gerückt. Des Weiteren sollte eine hohe chemische Trägheit und Resistenz gegen reaktive Stoffe über einen sehr großen Temperaturbereich gegeben sein.

Hochtemperaturwerkstoffe sind Materialien, die entweder bei hohen Temperaturen eingesetzt oder hergestellt werden. Einkristalle, Gläser oder Keramiken, deren Synthese aus Oxiden, Fluoriden, Nitriden, Boriden oder Karbiden erfolgt, zählen meistens zu den Hochtemperaturwerkstoffen. Die Herstellung dieser Materialien erfordert spezielle Technologien, insbesondere bei Prozess- oder Schmelzentemperaturen von über 2000 °C. Konventionelle Schmelzöfen für beispielsweise Metalle sind für das Schmelzen von Hochtemperaturwerkstoffen ungeeignet. Die keramischen Schmelztiegel verschleißen sehr schnell und verunreinigen das Schmelzprodukt. Eine hohe Reinheit ist jedoch bei der Herstellung von Hightech-Werkstoffen hinsichtlich der Qualitätsansprüche im höchsten Maße erforderlich. So dürfen zum Beispiel Einkristalle und Gläser für Laseranwendungen keinerlei lichtstreuende Partikel enthalten.

Neben der Reinheit werden an den Herstellungsprozess neuer Materialien weitere Anforderungen gestellt: Viele Werkstoffe müssen in definierten, z. B. in oxidierenden oder reduzierenden, Atmosphären produziert werden. Um eine hohe Produktivität zu erzielen, sollten Schmelzen mit ausreichend großen Volumina zur Verfügung stehen. Außerdem müssen die Materialien mit einem geringen Verbrauch an natürlichen Resourcen (Wasser, Energie etc.) bei minimaler Produktion an umweltschädlichen oder -belastenden Substanzen herzustellen sein. Angesichts der Wirtschaftlichkeit sollten kompakte Schmelzanlagen, die möglichst viele Prozessschritte vereinen und verschleißarm betrieben werden können, zum Einsatz kommen.

Eine ausgezeichnete Methode zur Herstellung von Hochtemperaturwerkstoffen unter Einhaltung der oben genannten Forderungen stellt die induktive Skull-Melting-Technologie (kurz: ISMT) dar. Sie ermöglicht das induktive Schmelzen von elektrisch schwach leitfähigen Materialien wie Oxiden, Gläsern und Keramiken. Derartige Materialien sind dadurch charakteri-

2 1 Einleitung

siert, dass ihre elektrische Leitfähigkeit mit zunehmender Temperatur häufig um mehrere Zehnerpotenzen ansteigt. Aus diesem Grund ist es möglich, Materialien, die bei Raumtemperatur noch elektrische Isolatoren darstellen, nach Anwendung eines geeigneten Vorheizprozesses induktiv zu schmelzen. Dabei lassen sich mühelos unter Ausnutzung der für Induktionsverfahren typischen hohen Leistungsdichte Temperaturen von über 3000°C erzielen.

Der Skull-Melting-Prozess findet entweder in einem *kalten Tiegel* oder in einem *Induktortiegel* statt. Beim kalten Tiegel handelt es sich um einen geschlitzten Metalltiegel, der von einem separaten Induktor umgeben ist. Im Gegensatz hierzu stellt der Induktortiegel eine Kombination aus Metalltiegel und Induktor dar. Aufgrund der intensiven Wasserkühlung im kalten Tiegel bzw. Induktortiegel bildet sich um die Schmelze eine feste Sinterschicht des zu schmelzenden Ausgangsmaterials, die den Kontakt zwischen Schmelze und Tiegel unterbindet. Diese als Skull bezeichnete Schicht schützt die Schmelze vor Verunreinigungen durch das Tiegelmaterial. Demzufolge lassen sich mit der ISMT Produkte höchster Reinheit herstellen.

Die ISMT ist keine neue Technologie, sondern wurde bereits in den 60er und 70er Jahren vornehmlich von französischen [1–3] und russischen [4–7] Wissenschaftlern entwickelt und ausführlich beschrieben. Anwendung findet die ISMT unter anderem in der Herstellung feuerfester Werkstoffe in Form von polykristallinen Keramiken [8–11], in der Kristallzüchtung für synthetische Edelsteine [12–17] und beim Glasschmelzen [18, 19] für optische Spezialgläser oder Laserapplikationen. Gegenwärtig wird mit großem Engagement die Weiterentwicklung von Verglasungstechnologien vorangetrieben, die es ermöglichen, hochradioaktive Abfälle mittels der ISMT in Glas- oder Keramikmatrizen einzubinden.

Da die hier betrachteten Materialien selbst im schmelzflüssigen Zustand im Vergleich zu Metallen geringe elektrische Leitfähigkeiten aufweisen ( $\approx 1-10^4\,\mathrm{S/m}$ ), müssen bei der ISMT bezüglich der Durchführbarkeit des Schmelzprozesses hohe Arbeitsfrequenzen zur Verfügung stehen. In den 70er Jahren entwickelten russische Forscher analytische Näherungsformeln, nach denen der Wert für die Frequenz hinsichtlich eines optimalen Schmelzprozesses gewöhnlich höher als 1 MHz sein muss. Hohe Frequenzen in Verbindung mit angemessenen Leistungen konnten in dieser Zeit lediglich Röhrengeneratoren zur Verfügung stellen.

Seit Ende der 80er Jahre rücken vermehrt moderne Halbleiter-Umrichter als leistungsstarke Hochfrequenz-Generatoren in den Vordergrund. Diese weisen mit über 90 % einen deutlich höheren Wirkungsgrad auf als Röhrengeneratoren  $(50-68\,\%)$  [20,21] und zeichnen sich überdies durch erheblich geringere Anschaffungs- und Betriebskosten aus. Allerdings liegen die heute maximal verfügbaren Frequenzen, die von den Halbleiter-Umrichtern zur Verfügung ge-

stellt werden können, bei mehreren 100 kHz. Zur Zeit wird angestrebt, Halbleiter-Umrichter mit Frequenzen um und über 1 MHz zu entwickeln.

Vor diesem Hintergrund erfolgt in der vorliegenden Arbeit eine geschlossene Untersuchung der induktiven Skull-Melting-Technologie unter Einsatz eines modernen Transistorumrichters. Nach einer umfassenden Beschreibung der bis heute genutzten ISMT, sowohl in mathematischer und physikalischer als auch in praktischer Hinsicht, wird mit Hilfe analytischer Berechnungsmethoden und numerischer Simulationen eine multifunktionale Skull-Melting-Anlage ausgelegt und am Institut für Elektrothermische Prozesstechnik aufgebaut.

Als Schmelzeinheiten kommen einerseits kalte Tiegel beim Schmelzen von Oxiden und andererseits Induktortiegel beim Glasschmelzen zum Einsatz. Die kalten Tiegel werden mittels analytischer Näherungsformeln, die in Russland bereits empirisch für die ISMT bei Verwendung eines Röhrengenerators entwickelt wurden, ausgelegt. Unter Zuhilfenahme eines in Kooperation mit der Universität Lettlands in Riga entwickelten 2D-Simulationstools lassen sich Induktortiegel für den Glasschmelzprozess auslegen. Das Modell berücksichtigt dabei thermische, elektromagnetische und hydrodynamische Effekte, sodass eine detaillierte Beschreibung des Schmelzprozesses im Induktortiegel stattfinden kann.

Zahlreiche experimentelle Untersuchungen des Schmelzprozesses von unterschiedlichen Oxiden und Gläsern erlauben eine umfassende Prozessanalyse des Skull-Melting-Verfahrens. Ausgehend vom Start- bis hin zum Erstarrungsprozess werden sämtliche Verfahrensschritte in allen Einzelheiten charakterisiert. Dabei liegt das Hauptaugenmerk auf der Durchführbarkeit des Schmelzprozesses bei Verwendung eines Transistorumrichters, der Frequenzen bis maximal 350kHz bereitstellt. Mit Hilfe der aufgezeichneten Messdaten findet eine Überprüfung der russischen Berechnungsmethoden in Bezug auf ihre Anwendbarkeit auf den Schmelzprozess bei Verwendung eines modernen Transistorumrichters statt. Eine kritische Beurteilung des neu entwickelten numerischen Simulationstools schließt die vorliegende Arbeit ab.

## 2 Problemstellung und Zielsetzung

Die induktive Skull-Melting-Technologie wird bereits seit den 70er Jahren erfolgreich auf verschiedensten Anwendungsgebieten industriell eingesetzt. In Russland bietet der Markt noch heute standardisierte Skull-Melting-Anlagen an, deren Entwürfe bereits in den 70er Jahren vorlagen. Hauptsächlich werden diese Schmelzanlagen im Bereich der Kristallzüchtung und zur Herstellung von polykristallinen Keramiken benutzt [15]. Das induktive Schmelzen von Gläsern hat in Frankreich einen hohen Stellenwert erlangt. Entsprechende Skull-Melting-Anlagen, in denen sowohl kalte Tiegel als auch Induktortiegel Verwendung finden [22], werden z. B. von der Firma *CELES Induction Technologie* angeboten. Es hat sich herausgestellt, dass im Wesentlichen jene Nationen die ISMT einsetzen, welche auch die Pionierarbeit auf dem Gebiet geleistet haben. In anderen Ländern hat sich die ISMT weniger durchgesetzt.

Erst mit dem Problem der Beseitigung bzw. Lagerung von radioaktiven Abfällen konnte die ISMT seit den 80er Jahren wieder verstärkt in den Fokus der Wissenschaft und der industriellen Anwendung treten. Insbesondere Länder wie Frankreich [23,24], Russland [25] und die USA [26], die in hohem Maße Kernkraftwerke zur Gewinnung elektrischer Energie einsetzen, suchen nach Lösungen, hochradioaktive Nuklearabfälle mittels der ISMT in Glas- oder Keramikmatrizen einzubinden. Die hieraus gewonnenen erstarrten Glasblöcke sollen nur noch eine geringe Strahlungsbelastung und schließlich eine hervorragende Lagerfähigkeit aufweisen.

Gegenüber konventionellen Schmelzverfahren sprechen für die ISMT eine Vielzahl an Vorteilen. Dabei ist der Einsatz einer stark wassergekühlten Schmelzeinheit, folglich eines kalten Tiegels oder Induktortiegels, der bedeutendste Aspekt. Aufgrund der hohen Leistungsdichte, die direkt im zu schmelzenden Material induziert wird, lassen sich ausgesprochen hohe Schmelzentemperaturen realisieren. Des Weiteren können durch die sich ausbildende Skullschicht Materialien von exzellenter Qualität bezüglich ihrer Reinheit erzeugt werden.

Um jedoch die Weiterentwicklung der ISMT zu fokussieren, müssen zeitgemäße Veränderungen vorgenommen werden. Der Schmelzprozess sollte hinsichtlich seines Wirkungsgrads sowie seiner Anschaffungs- und Betriebskosten optimiert werden. Bislang kommen bei der ISMT aufgrund der sehr hohen verfügbaren Frequenzen von über 20 MHz überwiegend Röhrengeneratoren zum Einsatz. Diese sind allerdings sehr kostenintensiv und weisen einen maxi-

malen Wirkungsgrad von höchstens 70% auf. Hier könnte ein moderner Halbleiter-Umrichter aufgrund seines erheblich höheren Wirkungsgrads von über 90% eine Anhebung des Prozesswirkungsgrads bewirken. Außerdem liegen die Anschaffungs- und Betriebskosten deutlich unter denen eines Röhrengenerators. Halbleiter-Umrichter, die auf der Basis von Transistoren (MOSFETs, IGBTs etc.) arbeiten, sind heutzutage als Energieversorgung für die häufigsten Induktionsanwendungen industrieller Standard. Gleichwohl könnten sich die niedrigeren Frequenzen und Spannungen bei höheren Strömen nachteilig auf den Skull-Melting-Prozess auswirken. Dies bezieht sich sowohl auf den Leistungsbedarf als auch auf die generelle Realisierbarkeit des Schmelzprozesses.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, eine multifunktionale Skull-Melting-Anlage auf der Grundlage eines Transistorumrichters zu entwerfen und aufzubauen, um im Anschluss die Einsatzfähigkeit des Transistorumrichters bezüglich der Durchführbarkeit unterschiedlicher Schmelzprozesse zu überprüfen. Hierbei sollen sowohl kalte Tiegel beim Schmelzen von Oxiden als auch Induktortiegel beim Glasschmelzen zum Einsatz kommen.

Gegenwärtig stehen zur Auslegung von Skull-Melting-Anlagen, speziell der Schmelzeinheiten, nur wenige Hilfsmittel zur Verfügung. Eine geschlossene mathematische Beschreibung der ISMT ist, bedingt durch die Komplexität des Prozesses und der Nichtlinearitäten einer Vielzahl an Parametern, praktisch unmöglich. Viele der prozessbestimmenden physikalischen Größen lassen sich nicht präzise berechnen, weil die erforderlichen Materialdaten für den schmelzflüssigen Zustand der hier betrachteten Materialien nicht bekannt sind.

Russische Forscher haben in den 70er Jahren empirisch Näherungsformeln aufgestellt, die benutzt werden, um elektrische und thermische Parameter für einen optimalen Schmelzprozess im kalten Tiegel abzuschätzen [7,10,27,28]. Unter Berücksichtigung dieser analytischen Berechnungsmethoden werden im Zuge dieser Arbeit kalte Tiegel ausgelegt und konstruiert. Da die Näherungsformeln lediglich für den Schmelzbetrieb mit Röhrengeneratoren entwickelt werden konnten, müssen experimentelle Untersuchungen bestätigen, dass die Formeln auch auf den Schmelzprozess mit einem Transistorumrichter übertragbar sind.

Der Induktortiegel zeichnet sich zum einen durch seine einfache und kompakte Bauweise und zum anderen durch einen, im Vergleich zum kalten Tiegel, höheren elektrischen Wirkungsgrad aus. Denn elektrische Verluste, die das vom Induktor erzeugte elektromagnetische Feld in einem kalten Tiegel induziert, müssen bei Benutzung eines Induktortiegels nicht berücksichtigt werden. Röhrengeneratoren arbeiten gewöhnlich mit hohen Ausgangsspannungen, die in der Vergangenheit immer wieder zu Kurzschlüssen bzw. Überschlägen am Induk-

tortiegelspalt führten [29]. Aus diesem Grund konnte sich der Induktortiegel, von wenigen Ausnahmen abgesehen, sowohl in der Forschung als auch in der Industrie nicht durchsetzen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit soll der induktive Glasschmelzprozess in einem Induktortiegel untersucht und weiterentwickelt werden. Zu diesem Zweck ist zuvor die Auslegung und Anfertigung eines Induktortiegels erforderlich. Für die Bestimmung der entsprechenden Prozess- und Auslegungsparameter, wie die Abmessungen des Induktortiegels, soll ein numerisches Simulationstool entwickelt werden. Parameterstudien ausschließlich über Versuchsreihen durchzuführen, erscheint wenig sinnvoll, weil experimentelle Arbeiten langwierig und meistens sehr kostspielig sind. Mit Hilfe numerischer Simulationen können einzelne Prozessparameter einfach und schnell angepasst werden, um beispielsweise eine homogenere Temperaturverteilung in der Schmelze zu erzielen. Unmittelbar nach einer numerischen Berechnung, die aufgrund heutiger Rechnerleistungen häufig nur noch wenige Stunden andauert, werden die Auswirkungen der Modifikationen ersichtlich. Aus diesen Gründen ist die Durchführung numerischer Simulationen zur kostengünstigen Optimierung komplexer Prozesse unverzichtbar geworden.

Das zu entwickelnde Simulationstool, dessen Erstellung in Kooperation mit der Universität Lettlands in Riga erfolgt, soll bei der Modellierung des Skull-Melting-Prozesses im Induktortiegel thermische, elektromagnetische und hydrodynamische Effekte berücksichtigen. Kommerzielle Simulationsprogramme müssten mit großem Aufwand an die vielschichtige Problematik der ISMT angepasst werden, weshalb in dieser Arbeit auf derartige Software verzichtet wird. Aufgrund der deutlich einfacheren Geometrie, im Vergleich zum kalten Tiegel mit separatem Induktor, soll die Modellierung nur für den Schmelzprozess im Induktortiegel auf der Basis eines axialsymmetrischen 2D-Modells erfolgen. Mit Hilfe experimenteller Untersuchungen muss das Simulationstool letztendlich verifiziert werden.

Nach der Auslegung und Installation der Skull-Melting-Anlage am Institut für Elektrothermische Prozesstechnik stellen die Durchführung und Auswertung verschiedener Schmelzund Kristallzüchtungsversuche einen weiteren Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit dar. Die experimentellen Untersuchungen ermöglichen eine präzise und anwendungsorientierte Prozessanalyse der ISMT für unterschiedliche Materialien sowohl im kalten Tiegel als auch im Induktortiegel. Hierbei sollen Oxide, Gläser und Keramiken, die möglichst gegensätzliche Materialeigenschaften aufweisen, geschmolzen werden, um die Funktionalität der installierten Schmelzanlage bei Verwendung eines Transistorumrichters zu testen. Abschließend sind die aufgezeichneten Messdaten, welche aus den Schmelz- und Kristallzüchtungsversuchen

resultieren, zu bewerten und mit den analytisch und numerisch berechneten Parametern zu vergleichen.

Die Aufgabenstellung für diese Arbeit lässt sich im Wesentlichen wie folgt zusammenfassen: Nach einer ausführlichen Aufarbeitung und Beschreibung der induktiven Skull-Melting-Technologie soll eine Skull-Melting-Anlage ausgelegt und aufgebaut werden, die sowohl den Schmelzprozess im kalten Tiegel als auch im Induktortiegel für unterschiedliche elektrisch schwach leitfähige Materialen ermöglicht. Ein bedeutsames Auslegungskriterium ist, dass die Energieversorgung durch einen modernen Transistorumrichter, der sich durch einen hohen Wirkungsgrad auszeichnet, anstelle eines konventionell eingesetzten Röhrengenerators gewährleistet werden muss. Ob sich die dadurch kleineren verfügbaren Frequenzen nachteilig auf den Schmelzprozess auswirken, muss überprüft werden. Mit Hilfe analytischer Näherungsformeln und numerischer Simulationen sind die Abmessungen der Schmelzeinheiten sowie die erforderlichen elektrischen und thermischen Parameter für einen erfolgreichen Schmelzprozess zu bestimmen. Anhand von diversen experimentellen Untersuchungen an der zu installierenden Schmelzanlage sollen eine detaillierte Prozessanalyse, ausgehend vom Start- bis hin zum Erstarrungsprozess, eine Überprüfung der Anwendbarkeit der Näherungsformeln und eine Verifizierung des Simulationstools erfolgen.