



Beeinflussung der thermomagnetischen Konvektion in Ferrofluidschichten durch den magnetischen Soret-Effekt

Der Fakultät Maschinenwesen
der
Technischen Universität Dresden
zur
Erlangung des akademischen Grades
Doktoringenieur (Dr.-Ing.)
vorgelegte Dissertation

Dipl.-Betriebsw. (BA) Dipl.-Ing. Lisa Sprenger
geb. am 15.04.1982 in Marburg/Lahn

Erster Gutachter:
Zweiter Gutachter:
Betreuender Hochschullehrer:

Prof. Dr. rer. nat. habil. Stefan Odenbach
Prof. Dr. rer. nat. Manfred Lücke
Prof. Dr. rer. nat. habil. Stefan Odenbach

Tag der Einreichung:

Dresden, den 21.06.2013

Kurzzusammenfassung

Mit der vorliegenden Arbeit zum Thema „Beeinflussung der thermomagnetischen Konvektion in Ferrofluidschichten durch den magnetischen Soret-Effekt“ wird der Zusammenhang zwischen dem Einsetzen von thermomagnetischer Konvektion und der vom Magnetfeld abhängigen Thermodiffusion untersucht. Aus einer früheren Arbeit [16] ist bekannt, dass magnetfeldunterstützte Konvektion in Abhängigkeit vom verwendeten magnetischen Fluid unterdrückt werden kann. Als mögliche Ursache dafür wird die Thermodiffusion als thermisch und vom Magnetfeld getriebener Prozess genannt, dessen Transportrichtung magnetfeldsensitiv [23] und vermutlich fluidabhängig ist.

Diese Arbeit stützt sich auf die eingehende Untersuchung der Thermodiffusion im Magnetfeld, sowohl theoretisch als auch experimentell. Beschrieben wird die Thermodiffusion theoretisch über das Konzentrationsprofil in Abhängigkeit von Zeit und Ort in einer Fluidschicht. Die Experimente detektieren die Separation des Fluids über die Konzentrationsdifferenz zwischen zwei Fluidkammern. Zur Bestimmung des Soret-Koeffizienten als Maß der Thermodiffusion, sind in jedem Fall experimentelle Daten notwendig. Über einen Datenfit zwischen diesen und den theoretischen Betrachtungen kann der Koeffizient ermittelt werden. Für das kerosinbasierte Ferrofluid EMG905 wurden zwei Effekte festgestellt. Bei kleinen Magnetfeldstärken wandern die Partikel zum kalten Rand der Schicht, bei steigenden Feldstärken kehrt sich diese Richtung um. Eine Anisotropie der Intensität der Diffusion besteht zwischen dem parallel und senkrecht zum Temperaturgradienten ausgerichteten Feld. Bei jeweils einer Feldstärke von 320 kA/m ist im ersten Fall die Diffusion um eine Größenordnung geringer als im zweiten Fall.

Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Thermodiffusion gehen dann in eine lineare Stabilitätsanalyse einer Ferrofluidschicht bei anliegendem Temperaturgradienten und Magnetfeld ein. In Anlehnung an analytische wie auch numerische Arbeiten [8, 17] wird dabei festgestellt, dass die kritische Rayleigh-Zahl als charakteristische Größe zum Einsetzen von Konvektion von dem Soret-Koeffizienten abhängt. Ist letzterer positiv, wird das Einsetzen von Konvektion begünstigt, ist er wiederum negativ, so kann Konvektion vollständig unterdrückt werden.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	i
Lateinisches Symbolverzeichnis	v
Griechisches Symbolverzeichnis	ix
Konstanten	xi
Indizes	xi
1 Einleitung und Motivation	1
2 Ferrofluide - Grundlagen und Charakterisierung	5
2.1 Zusammensetzung	5
2.2 Grundlegende physikalische Eigenschaften	9
2.3 Methoden zur Bestimmung ausgewählter Fluidparameter	17
2.4 Anwendungsgebiete	21
3 Thermophysikalische Transportphänomene in Ferrofluiden	23
3.1 Thermomagnetische Konvektion	23
3.1.1 Grundlagen der thermomagnetischen Konvektion	23
3.1.2 Theoretische Untersuchungen zum Einsetzen des Konvektionsstroms	25
3.1.3 Experimentelle Untersuchungen zum Übergang vom konduktiven zum konvektiven Wärmetransport	27
3.2 Thermodiffusion	29
3.2.1 Grundlagen der Thermodiffusion: Ludwig-Soret-Effekt	29
3.2.2 Messmethoden zur Detektion von Thermodiffusion in Ferrofluiden	31
3.2.3 Magnetfeldfreier Diffusionsprozess	33
3.2.4 Magnetischer Einfluss auf den Diffusionsstrom	35
3.3 Einfluss der Thermodiffusion auf die thermomagnetische Konvektion	39
4 Fluidcharakterisierung - Basis für theoretische und experimentelle Untersuchungen	43
4.1 Magnetische Eigenschaften	44
4.2 Rheologische Eigenschaften	47

4.3	Diffusivität	51
5	Untersuchungen zum thermodiffusiven Fluidtransport	55
5.1	Experimentelles Setup zur Messung des Diffusionsstroms.	55
5.1.1	Horizontale Thermodiffusionsmesszelle	55
5.1.2	Vorversuche zur Charakterisierung der Messzelle.	60
5.1.3	Bestimmung des Fehlers des Soret-Koeffizienten.	67
5.2	Numerische Untersuchungen zum magnetfeldfreien und -abhängigen Diffusionsprozess	67
5.2.1	Numerische Methode	67
5.2.2	Magnetfeldfreier Fall.	73
5.2.3	Magnetfeldabhängiger Fall	76
5.3	Vergleich der experimentellen und numerischen Ergebnisse.	80
5.3.1	Experimentell bestimmte Soret-Koeffizienten	80
5.3.2	Magnetfeldfreier Fall.	82
5.3.3	Magnetfeldabhängiger Fall	83
6	Untersuchungen zur thermomagnetischen Konvektion	87
6.1	Beschreibung der untersuchten Fluidschicht	87
6.1.1	Gleichungssystem.	87
6.1.2	Magnetische Systemparameter der Fluidschicht	89
6.2	Lineare Stabilitätsanalyse	91
6.2.1	Linearisiertes Gleichungssystem in den Störungen	91
6.2.2	Rayleigh-Zahl bei freien Rändern und homogener Konzentration $\partial_z c_{1GS} = 0$	94
6.2.3	Rayleigh-Zahl bei freien Rändern und stationärem Konzentrationsprofil $\partial_z c_{1GS} = 1$	97
6.2.4	Rayleigh-Zahl in Abhängigkeit der magnetischen Systemparameter	98
7	Zusammenfassung und Ausblick	101
7.1	Zusammenfassung	101
7.2	Ausblick	105
7.2.1	Thermomagnetische Konvektion	105
7.2.2	Thermodiffusion	107
	Literaturverzeichnis	111
	Abbildungsverzeichnis	121
	Tabellenverzeichnis	129
	Anhang	131

A	Experiment zur Thermodiffusion	131
B	Experimentelle Bestimmung des Diffusionskoeffizienten	135
C	Koordinatentransformation	137
D	Numerik der Diffusionsgleichung der Ferrofluidodynamik	139
E	Experimentelle magnetische Separationskurven	143

1 Einleitung und Motivation

Magnetische Flüssigkeiten, auch Ferrofluide genannt, sind binäre Flüssigkeiten bestehend aus magnetischen Nanopartikeln dispergiert in einer Trägerflüssigkeit. Eine dritte Komponente in diesem Stoffsystem sind Tenside, welche als Beschichtung der Partikel für deren stabile Verteilung im Trägermedium sorgen [1–3]. Die Eigenschaften sowie das Strömungsverhalten der Ferrofluide lassen sich durch technisch einfach zu realisierende Magnetfelder beeinflussen [4]. Besonders die letztgenannte Voraussetzung ermöglicht einen breiten Einsatz der Flüssigkeiten beispielsweise zur reibungsfreien Lagerung, zum Wärmeabtransport und zur Trennung von Stoffen unterschiedlicher Dichten [2, 4–6]. Besondere Bedeutung erhalten die Ferrofluide auch im Zusammenhang mit medizinischen Anwendungen [5–7].

Was neben dem Einfluss des Magnetfeldes auf die Fluide in vielen Anwendungen ebenso eine Rolle spielt, ist die Temperatur der Flüssigkeit. Ist diese nicht homogen über das Fluidvolumen verteilt, kann dies zu thermischen Transportprozessen im Fluid führen. Dazu gehört zum Beispiel Konvektion, welche im Folgenden als reine Konvektion bezeichnet wird, wenn sie allein durch thermisch bedingte Dichteunterschiede in einer Fluidschicht auftritt. Die thermomagnetische Konvektion hingegen bezeichnet einen konvektiven Fluidtransport, welcher auch bei einer stabilen Dichteschichtung durch die Wechselwirkung zwischen dem Ferrofluid, Magnetfeld und Temperaturgradienten hervorgerufen werden kann. Ein weiterer thermisch getriebener Prozess in Ferrofluiden ist die Thermodiffusion. Ein Temperaturgradient bewirkt dabei die Separation von Trägermedium und Partikeln in einem Fluidvolumen. Es kommt entlang des thermischen Gradienten zu einem Konzentrationsgradienten, welcher in seiner Ausprägung und Richtung maßgeblich durch ein äußeres Magnetfeld beeinflusst werden kann.

Die Untersuchung der thermomagnetischen Konvektion findet ihren Ursprung in einer Arbeit von Finlayson [8], welche das Phänomen zunächst theoretisch beschreibt. Dieser initialen Beschreibung folgen sowohl weitere theoretische als auch experimentelle Arbeiten [9–14]. Nach diesen Untersuchungen ist davon auszugehen, dass der Einfluss des Magnetfeldes auf eine Fluidschicht das Einsetzen von Konvektion fördert. Neuere experimentelle Arbeiten [15, 16] konnten jedoch für unterschiedliche Fluide feststellen, dass sowohl eine konvektionsfördernde als auch -hemmende Wirkung auftreten kann, welche nicht durch die Magnetfeldabhängigkeit der Fluidparameter erklärt werden konnte. Das konträre Einsetzen der Kon-

vektion muss daher seinen Ursprung in einem weiteren thermisch getriebenen Prozess haben, dessen Richtung relativ zum konvektiven Strom abhängig ist vom angelegten Magnetfeld und verwendeten Fluid. Für einen magnetfeldfreien Fall zeigen sowohl theoretische als auch experimentelle Arbeiten, dass das Einsetzen von Konvektion in binären Fluiden durch thermische Diffusion beeinflusst werden kann [17, 18]. Daher muss auch im magnetfeldabhängigen Fall ein Einfluss der Thermodiffusion auf die thermomagnetische Konvektion berücksichtigt werden. Thermodiffusive Vorgänge in Ferrofluiden mit und ohne Magnetfeld wurden in den letzten 30 Jahren von unterschiedlichen Arbeitsgruppen untersucht [19–24]. Die experimentellen Arbeiten auf diesem Gebiet weisen darauf hin, dass die Separationswirkung durch die thermische Diffusion im Magnetfeld ein anisotroper Effekt ist. Die theoretischen Arbeiten zu dieser Anisotropie [2, 3, 25–27] betrachten den Transportprozess entweder aus einer mikroskopischen oder makroskopischen Perspektive. Allerdings lassen sich aus diesen Theorien keine eigenständigen Vorhersagen des Separationsmechanismus und dessen Richtung treffen, ein Vergleich der Theorie mit experimentellen Daten ist in jedem Fall unerlässlich.

Sowohl aus den experimentellen Ergebnissen zur Konvektion [16] als auch denen zum thermodiffusiven Verhalten von magnetischen Flüssigkeiten [23] und der Kenntnis über den Zusammenhang beider im nicht-magnetischen Umfeld [17, 18] entsteht die Notwendigkeit, den Einfluss der beiden Transportphänomene aufeinander im Magnetfeld zu untersuchen. Dies ist die Aufgabe der vorliegenden Dissertation, welche zur Ausarbeitung des Zusammenhangs zwischen beiden Transportprozessen im ersten Teil dieser Arbeit die theoretischen Grundlagen erläutert. Dies beginnt mit einem Überblick zur chemisch-physikalischen Zusammensetzung der Fluide und den daraus resultierenden grundlegenden physikalischen Eigenschaften und Methoden zu deren Bestimmung. Daran schließt sich eine detaillierte Betrachtung der beiden thermophysikalischen Transportphänomene an, welche Hauptthema der Arbeit sind. Dabei wird auf die umfangreichen bisherigen sowohl experimentellen als auch theoretischen Arbeiten eingegangen, die im Zuge der Literaturrecherche ausgewertet wurden. Es wird aufgezeigt, wo sich die im zweiten Teil dieser Dissertation erarbeiteten Ergebnisse eingliedern. Dieser zweite Teil beginnt zunächst mit der Charakterisierung der im hauptsächlich verwendeten Ferrofluide EMG905 und APG513A (Ferrotec). Zur Untersuchung des thermophysikalischen Verhaltens der Ferrofluide sind vor allem die magnetischen und rheologischen Eigenschaften von Interesse. Sie bestimmen den Grad der Diffusivität der Fluide. Das fünfte Kapitel dieser Arbeit widmet sich dann der Bestimmung des magnetfeldabhängigen Soret-Koeffizienten als Charakteristikum der Intensität und Richtung der Separa-

tionswirkung durch den anliegenden Temperaturgradienten und das Magnetfeld. Experimentellen Ergebnissen werden dabei analytische und numerische Untersuchungen gegenübergestellt. Die Kenntnis über diesen thermisch-magnetisch getriebenen Diffusionsstrom geht in das folgende Kapitel zur theoretischen Betrachtung der thermomagnetischen Konvektion unter Wirkung der Thermodiffusion ein. Über Stabilitätsbetrachtungen kann der tatsächliche Einfluss des Soret-Koeffizienten auf das Einsetzen von Konvektion bestimmt werden. Zum Abschluss der Arbeit werden alle Ergebnisse in zusammengefasster Form präsentiert. Es werden zudem Punkte aufgezeigt, an denen künftige Untersuchungen ansetzen können, um weitere interessante Aspekte in diesem Themenkomplex zu bearbeiten.

7 Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

Der Ausgangspunkt dieser Arbeit ist die Frage danach, ob möglicherweise thermodynamische Transportprozesse in einem Ferrofluid thermomagnetische Konvektion unterdrücken können. Dazu waren zwei Hauptaspekte zu klären, zum einen an welcher Stelle sich der Soret-Koeffizient als charakteristische Größe der Thermodiffusion in der Beschreibung der Konvektion über die Rayleigh-Zahl niederschlägt, zum anderen wie groß der Soret-Koeffizient im untersuchten Fluid ist.

Wie sieht der Zusammenhang $Ra_c = Ra_c(S_T)$ aus?

Die Einflüsse sowohl von magnetischen aber besonders von thermodynamischen Effekten auf die Stabilitätsgrenzen einer Schicht einer magnetischen Flüssigkeit, über welcher ein Temperaturgradient anliegt, wurden mittels einer linearen Stabilitätsanalyse qualitativ untersucht. Der Verlauf der Rayleigh-Zahl des Systems bestimmt dabei den kritischen Punkt, an dem konvektive Transportprozesse einsetzen können. Angestrebt wurde bei den durchgeführten Analysen eine Analogie zu Systemen herzustellen, welche bereits entweder den thermodynamischen [17] oder den magnetischen Einfluss [8] bewertet haben. Aus diesem Grund wurde das die Fluidschicht beschreibende partielle Differentialgleichungssystem unter Berücksichtigung der beiden genannten theoretischen Arbeiten [8, 17] aufgestellt. Des Weiteren war das erklärte Ziel, die theoretische Beschreibung der Fluidschicht über das Gleichungssystem soweit wie möglich mit experimentell bestimmbar Fluiden zu füllen. Zu diesem Zweck konnte die Fluidcharakterisierung des 4. Kapitels dieser Arbeit herangezogen werden.

Bei der Bestimmung des Differentialgleichungssystems stand speziell die konkrete Darstellung der Diffusionsgleichung im Vordergrund. Der die Thermodiffusion beschreibende Term $DS_T \vec{\nabla} \cdot (c_1(1 - c_1) \vec{\nabla} T)$ in Gleichung 3.18 wird in einigen Darstellungen [17, 89] allein über die Temperaturabhängigkeit bestimmt. Der die Konzentration enthaltende Vorfaktor wird über die homogene Anfangskonzentration mit $c_1(1 - c_1) \approx c_0(1 - c_0)$ genähert und als konstant betrachtet. Alternativ dazu kann natürlich die Abhängigkeit des Terms auch von der Konzentration berücksichtigt werden.

Vergleicht man die beiden berechneten stationären Konzentrationsprofile für diese unterschiedlichen Annahmen miteinander, zeigt sich, dass die Zulässigkeit der Näherung über die homogene Anfangskonzentration durch die in der Schicht vorhandene Temperaturdifferenz bestimmt wird. Je größer dabei diese Differenz wird, desto weiter weichen die berechneten Konzentrationsprofile voneinander ab. Der Gradient der Konzentration in der Schicht ist dabei größer, wenn auf die Näherung der Konzentration verzichtet wird. Zudem prägt sich mit steigender Temperaturdifferenz der exponentielle Charakter des Profils aus. Eine Symmetrie des Profils an der Mittelschicht der Fluidschicht ergibt sich dabei nicht. Aufgrund der Wahl der Systemparameter kann jedoch im in dieser Arbeit untersuchten Fall davon ausgegangen werden, dass die Näherung der Konzentration über einen konstanten Wert zu einer zulässigen Beschreibung des Konzentrationsprofils führt.

Die Bewertung des Magnetfeldeinflusses auf die Fluidschicht orientierte sich an der bereits genannten Arbeit von Finlayson [8]. Hier stand im Fokus die Untersuchung der Größenordnung der beiden magnetischen Systemparameter M_1 und M_3 auf Basis der Fluidparameter des EMG905-Fluids. Finlayson betrachtet in seiner Arbeit [8] verallgemeinerte Fälle der kritischen Rayleigh-Zahl und beschreibt mit $M_1=0$ und $M_3=1$ den magnetfeldfreien Fall. Für den Fall großer Magnetfelder jedoch nimmt er an, dass beide Parameter sehr groß werden [8]. Eine genauere Untersuchung der beiden Werte ergab jedoch, dass sich das sättigende Verhalten der Magnetisierung der magnetischen Flüssigkeit bei großen Magnetfeldstärken auch auf die Parameter überträgt. Somit führen diese großen Magnetfeldstärken nicht zu sehr großen Werten von M_1 und M_3 sondern in einen Sättigungsbereich, der sich an ein Maximum beider Werte im Bereich zwischen 25 kA/m und 50 kA/m anschließt. M_1 bewegte sich für die Fluidparameter des EMG905-Fluids zwischen 0 und 3, während M_3 nur etwa zwischen 1 und 1,2 variierte. Der Einfluss von M_3 auf den ermittelten Verlauf der Rayleigh-Zahl war dabei so gering, dass er vernachlässigt werden konnte, M_3 wurde in den Rechnung mit 1,1 angenommen. Eine Variation von M_1 dahingegen führte auf Rayleigh-Zahlen, welche um einen Faktor 10 voneinander abwichen. Da jedoch der Soret-Koeffizient eine Variation der bestimmbar Rayleigh-Zahlen bis zu drei Größenordnungen nach sich zieht, konnte auch die Abhängigkeit der Rayleigh-Zahl von M_1 gegenüber dem Einfluss der Thermodiffusion vernachlässigt werden. M_1 wurde daher mit einem konstanten Wert von 0,5 angenommen.

Da, wie beschrieben, der stärkste Einfluss auf die Rayleigh-Zahl aus dem thermodiffusiven Partikeltransport im betrachteten System herrührte, wurde die kritische Rayleigh-Zahl ausschließlich in Abhängigkeit vom Soret-Koeffizienten angegeben. Unter Berücksichtigung von $M_1=0,5$ und $M_3=1,1$ ließen sich drei Bereiche bestimmen. War der Soret-Koeffizient leicht negativ mit Werten um $-0,001 \text{ K}^{-1}$, ergab sich

$Ra_c=1586,6$ und $k_c=1,69$. Bei $S_T=0\text{ K}^{-1}$ erhielt man die analytische Lösung gemäß Finlayson [8] mit $Ra_c=554,5$ und $k_c=2,38$ und für $S_T=0,2\text{ K}^{-1}$ ließ sich $Ra_c=3,652$ und $k_c=2,82$ bestimmen.

Wie groß ist der Soret-Koeffizient des EMG905 im Magnetfeld?

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf den Untersuchungen zur Thermodiffusion und der konkreten Bestimmung des magnetischen Soret-Koeffizienten. Da die theoretischen Ergebnisse unmittelbar mit den experimentellen Erkenntnissen verknüpft sind, konnten beide nur im Zusammenhang betrachtet werden. Die bisherigen Daten für den Soret-Koeffizienten stützten sich im Wesentlichen auf ein einzelnes magnetisches Fluid. Um jedoch den diffusiven Transportprozess besser verstehen zu können, musste die Datenerhebung mittels Separationsversuchen verstärkt werden. Daher wurden im Zuge dieser Arbeit umfangreiche Untersuchungen sowohl zur Funktionsfähigkeit der in den Separationsexperimenten verwendeten Thermodiffusionszelle als auch zur Abhängigkeit des Soret-Koeffizienten von Fluid, Temperaturgradient und Magnetfeld durchgeführt.

Zur Überprüfung der Funktionsfähigkeit wurden Versuche durchgeführt, die das Temperaturprofil in der Zelle bestimmten und die bei einer homogenen Temperatur sowohl mit als auch ohne Magnetfeld nachwiesen, dass keine Änderung der Spuleninduktivität aufgrund von äußeren Einflüssen hervorgerufen wurde. Der Vergleich der Separationskurven des esterbasierten APG513A und des kerosinbasierten EMG905 bestätigte, dass die Intensität des gemessenen Separationssignals direkt von der Diffusivität des jeweiligen Fluids abhängig ist. Mit der hohen Viskosität des APG-Fluids und der damit gekoppelten niedrigen Diffusivität wurde ein um eine Größenordnung geringeres Separationssignal als bei dem EMG-Fluid detektiert. Daraufhin wurde die Entscheidung getroffen, alle weiteren Versuche mit dem EMG905-Fluid durchzuführen. Außer von der Diffusivität ist das Separationssignal linear abhängig von der Größe des Temperaturgradienten. Die Begrenzung des experimentell möglichen Temperaturgradienten ergab sich aus der Isolierung der Thermodiffusionszelle. Mit einem Anwachsen der Temperaturdifferenz an dem Separationsspalt wuchs gleichzeitig auch die Differenz zwischen Umgebungstemperatur und den beiden Wasserbädern, was zu einem stärkeren Wärmeabtransport an die Umgebung führte und den realen Temperaturgradienten verringerte. Versuche bei unterschiedlichen Temperaturgradienten von $0,5\text{ K/mm}$, $0,75\text{ K/mm}$, 1 K/mm und 2 K/mm machten deutlich, dass der optimale Kompromiss zwischen einem hohen Separationssignal und stabiler, experimentell umsetzbarer Temperaturdifferenz bei rund 1 K/mm lag.

Über die theoretischen Betrachtungen zur Bestimmung des Soret-Koeffizienten aus

den Separationsexperimenten konnten die Fluidparameter identifiziert werden, welche parallel zu den Thermodiffusionsexperimenten bestimmt werden mussten. Zu diesen Parametern gehörten ganz wesentlich die Partikelvolumenkonzentration, die Partikelgrößenverteilung und ein daraus gemittelter Partikeldurchmesser, die Viskosität des Fluids und für die FFD-Theorie auch die Bestimmung des pyromagnetischen Koeffizienten. Zudem war die Temperaturabhängigkeit der Viskosität zu untersuchen.

Als besondere Schwierigkeit im Verlauf der Experimente erwies sich vor allem die Stabilität des Temperaturgradienten. Die Kontrolle der über die Wasserbäder anliegenden Temperatur war regelmäßig durchzuführen. Im optimalen Fall war die Labortemperatur konstant und zeigte somit keinen Einfluss auf die Spuleninduktivität. Schwankungen bei dieser Temperatur allerdings führten bei der Induktivität der beiden Messspulen zu einem gleichgerichteten Effekt, welcher sich bei der Ermittlung der Konzentrationsdifferenz herausrechnete. Der Einfluss der Schwankungen der Labortemperatur auf die Separation ist nachrangig. Eine weitere Schwierigkeit bei der Experimentdurchführung war die Positionierung der Zelle. Um dichtegetriebene Konvektion zu verhindern, war der Separationsspalt horizontal auszurichten. Des Weiteren durfte die Zelle nach Anlaufen des Experiments nicht mehr neu positioniert werden, da ansonsten Sprünge in der Induktivität nicht ausgeschlossen werden konnten. Der Messeffekt aus der Separation über ein drei Tage andauerndes Experiment betrug etwa $3 \mu\text{H}$. Bei einer Grundinduktivität der Spule von rund $350 \mu\text{H}$, mussten deshalb soweit wie möglich alle störenden Einflüsse verhindert werden.

Unter diesen Voraussetzungen wurden magnetfeldunabhängige und -abhängige Separationsversuche durchgeführt. Ohne den Magnetfeldeinfluss wurde der Soret-Koeffizient mittels Gleichung 3.21 zu $S_T=0,169 \text{ K}^{-1}$, mittels FFD-Theorie gemäß Gleichung 3.22 zu $S_T=0,29 \text{ K}^{-1}$ und analytisch nach Gleichung 5.24 zu $S_T=0,184 \text{ K}^{-1}$ bestimmt. Die numerische Lösung nach FFD-Theorie verzichtet dabei weitestgehend auf die für die analytischen Lösungen notwendigen Näherungen ($\vec{\nabla}c_1 \ll c_1$, $c_1(1 - c_1) \approx c_1$, 1-dimensional) und liefert den größten Soret-Koeffizienten.

Unter Magnetfeldeinfluss ($H_0 = \{40; 100; 320\} \text{ kA/m}$) wurden zwei unterschiedliche Feldpositionierungen vermessen. Zum einen war das Feld parallel zum anderen senkrecht zum Temperaturgradienten an der Fluidschicht orientiert. Experimentell bestimmt und auf Basis von Gleichung 3.28 ausgewertet wurden die Soret-Koeffizienten zu $S_{T\parallel} = \{0,167; -0,061; -0,152\} \text{ K}^{-1}$ und $S_{T\perp} = \{0,084; -0,512; -0,257\} \text{ K}^{-1}$ bestimmt. Ein Daten-Fit auf Basis der FFD-Theorie gemäß Gleichung 3.34 lieferte für den parallel ausgerichteten Fall $S_{T\parallel} = \{0,11; -0,041; -0,079\} \text{ K}^{-1}$. Zur Bestimmung der Koeffizienten wurden die experimentell detektierten Separationsexperimente

tionskurven numerisch unter Verwendung der Parameter $\xi=1,927\cdot 10^{-13}$ kgs/m³, $\xi_{\perp}=3,033\cdot 10^{-10}$ kg/(msK) und $\xi_{\parallel} = \{4; 15; 20\} \cdot 10^{-11} \cdot D$ kgs/(A²m) nachgebildet. Diese Parameter wurden dann verwendet, um über eine analytische Näherungslösung nach Lange [27] die Soret-Koeffizienten zu berechnen. Bei senkrechter Ausrichtung des Magnetfelds zum Temperaturgradienten wurden sämtliche bis hierhin genannten Transportkoeffizienten beibehalten, für den noch verbleibenden Koeffizienten ξ_{\perp} wurden Werte zwischen $1\cdot 10^{-19}$ kgs/(Am²) und $1,3\cdot 10^{-17}$ kgs/(Am²) eingesetzt, jedoch konnte nur für die Feldstärke von 40 kA/m ein entsprechender Fit der Messdaten mit der theoretischen Separationskurve für $\xi_{\perp} = 1\cdot 10^{-17}$ kgs/(Am²) durchgeführt werden. Eine Richtungsumkehr, wie experimentell bestimmt, konnte numerisch nicht berechnet werden.

Die Zusammenführung dieser beiden thematischen Schwerpunkte lässt die Aussagen zu, dass die thermomagnetische Konvektion maßgeblich von thermodiffusiven Prozessen in den magnetischen Flüssigkeiten abhängig ist. Ein positiver Soret-Koeffizient trägt dazu bei, dass das Einsetzen der Konvektion begünstigt wird. Es sind im Vergleich zum magnetfeldfreien Fall geringere Temperaturdifferenzen an einer Fluidschicht nötig, um den konvektiven Wärmetransport anzustoßen. Leicht negative Soret-Koeffizienten führen zunächst zu einer Behinderung und ab einem Soret-Koeffizienten $S_T < -0,001$ K⁻¹ auch zur Unterdrückung der Konvektion. Über die experimentelle Bestimmung der Abhängigkeit des Soret-Koeffizienten vom Magnetfeld konnte nachgewiesen werden, dass der Koeffizient sowohl positive mit steigendem Magnetfeld allerdings auch negative Werte annehmen kann. Eine Unterdrückung der Konvektion bei bestimmten Magnetfeldstärken bei einem kerosinbasierten Ferrofluid ist somit nachgewiesen und erklärt das experimentell bereits von Engler [16] beobachtete Phänomen.

7.2 Ausblick

7.2.1 Thermomagnetische Konvektion

Die bisher untersuchten Stabilitätsgrenzen beziehen sich ausschließlich auf ein System mit einem negativen Temperaturgradienten. Die Schicht ist von unten geheizt, so dass in jedem Fall dichtegetriebene Konvektion in der Schicht auftreten kann. Ein positiver oder negativer Soret-Koeffizient fördert oder behindert dabei die Ausbildung eines positiven destabilisierenden Dichtegradienten. Die Bestimmung der Stabilitätsgrenzen ist allerdings auch in einer von oben geheizten Schicht (positiver

Temperaturgradient) denkbar. Der ohne Thermodiffusion entstehende Dichtegradient ist negativ und somit zunächst stabil. Dies wird zum Beispiel im Thermodiffusionsexperiment ausgenutzt. So lange der Soret-Koeffizient positiv ist und die Partikel in die Richtung des ohnehin stabilen Dichtegradienten wandern, ist Konvektion nicht möglich. Bei einem negativen Soret-Koeffizienten, wie in den magnetfeldabhängigen Separationsexperimenten, wandern allerdings die Partikel gegen die Richtung des Dichtegradienten. Dabei wird es, wenn der Dichtegradient durch Thermodiffusion groß wird, zu Konvektion kommen, die der temperaturbedingte Dichtegradient nicht ausgleichen kann. Der kritische Arbeitspunkt, der hier zu Konvektion führen kann, sollte gerade im Bezug auf die Separationsuntersuchungen bestimmt werden.

Neben der Untersuchung zum Einfluss linearer Störungen auf die Fluidschicht ist eine Erweiterung für nichtlineare Konvektionsmuster vorzunehmen. Dazu werden die Störungen an der Schicht gemäß [17, 74] mit beispielsweise

$$T(x, z, t) = T_0(z) + \Theta(z, t)\cos(kx) \quad (7.1)$$

für ein 2-dimensionales Konvektionsmuster, periodisch in der x -Richtung, dargestellt. Mit Ansatzfunktionen über der Schichtdicke (z) des Systems und der Zeit (t), welche die Randbedingungen erfüllen, eingesetzt in die Grundgleichungen der Fluidschicht, ergibt sich ein nicht-lineares Gleichungssystem. Dieses kann mit unterschiedlichen numerischen Methoden gelöst werden. Nach der Galerkin-Methode [111, 112, 128, 129] wird für die Störungen der hydrodynamischen Variablen ein Multimodenansatz

$$T(x, z, t) = \sum_{qn} T_{qn}(t)\exp(iqk_x x)f_n(z) \quad (7.2)$$

gewählt [112].

Eine zusätzliche Erweiterung der Stabilitätsuntersuchung bietet eine Veränderung des zugrundeliegenden Gleichungssystems. In den bisherigen Analysen ist der magnetfeldabhängige Diffusionsstrom in Gleichung 6.3 nicht explizit, sondern über die Magnetfeldabhängigkeit der Transportkoeffizienten berücksichtigt. Anstelle dieses, in Anlehnung an die Separationsexperimente entstandenen Ansatzes kann die Diffusionsgleichung allerdings auch auf Basis des Massenstroms der FFD-Theorie nach Gleichung 3.34 angewandt werden. Es ist jedoch zu erwarten, dass die über den Magnetfeldgradienten zusätzlich entstehende Kopplung zwischen der Diffusionsgleichung und der Impulsdichte eine analytische Näherung der Stabilitätsgrenze unmöglich macht.

7.2.2 Thermodiffusion

Die Ergebnisse sowohl der experimentellen als auch der theoretischen Untersuchungen zur Thermodiffusion führen zu weiteren interessanten Fragestellungen in diesem Themenkomplex. Als ein zentrales Thema bei der Bestimmung des Soret-Koeffizienten hat sich im Verlauf dieser Arbeit der Diffusionskoeffizient als Fluidparameter herausgestellt. Zu seiner experimentellen Ermittlung im magnetfeldfreien Fall wurden erste Versuche durchgeführt. Dazu wurde an den gewöhnlichen Separationsprozess eine Phase IV der Rehomogenisierung angeschlossen. Dazu wurde der Temperaturgradient

abgeschaltet und die homogene Anfangstemperatur der Zelle (298 K) angeschaltet. Der Verlauf dieser Messung ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist eine Umkehr des in Phase IV detektierten separierenden Signals. Eine grobe Auswertung dieser Messung inklusive der Bestimmung des Diffusionskoeffizienten befindet sich im Anhang B. Diese experimentelle Methode erscheint vielversprechend zur Bestimmung des Koeffizienten, sollte aber an weiteren Fluiden getestet werden. Eine Nutzung dieser Messmethode im magnetfeldabhängigen Fall ist ebenso denkbar.

Um zudem die Datenbasis zur Anisotropie des Soret-Koeffizienten im Magnetfeld zu verbreitern, müssen weitere Versuche mit anderen Fluiden durchgeführt werden. Von speziellem Interesse ist dabei, herauszufinden, ob der Soret-Koeffizient unter Einfluss eines Magnetfelds zu einem stoffspezifischen Fluidparameter wird. Während im magnetfeldfreien Fall der Soret-Koeffizient in dieser Arbeit mit $S_T=0,16 \text{ K}^{-1}$ bestätigt werden konnte [21–23], wurde für dessen Anisotropie im Feld ein Verlauf bestimmt, welcher aus früheren Arbeiten nicht bekannt war [23]. Da das hier untersuchte Fluid eine um den Faktor vier größere Volumenkonzentration aufweist als das in [23] vermessene Fluid, ist für weitere Versuche zu empfehlen, den Grund für die unterschiedliche Anisotropie hierin zu suchen. Vorstellbar ist die Vermessung einer Fluidreihe mit variierter Volumenkonzentration mit möglichst gleicher Partikelgrößenverteilung, wobei weiterhin auf eine geringe Gesamtviskosität der Ferrofluide zu achten ist. Auch im magnetfeldfreien Fall ist damit zu rechnen, dass

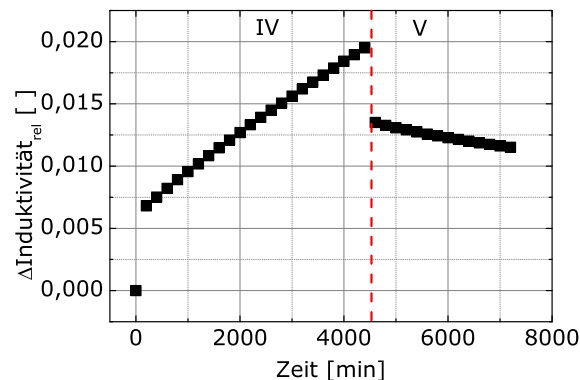


Abb. 7.1: Verlauf der Separation von EMG905 bei $\text{grad}(T)=1 \text{ K/mm}$ (Phase IV) und der sich anschließenden Rehomogenisierung bei $T_0=298 \text{ K}$ (Phase V).

der Soret-Koeffizient eine Konzentrationsabhängigkeit aufweist [56]. Diese könnte in dem genannten Messzusammenhang ebenfalls von Interesse sein.

Um bei solchen sehr zeitintensiven magnetfeldabhängigen Fluiduntersuchungen den Messablauf der Separation zu erleichtern, wurde ein Magnetsystem entworfen,

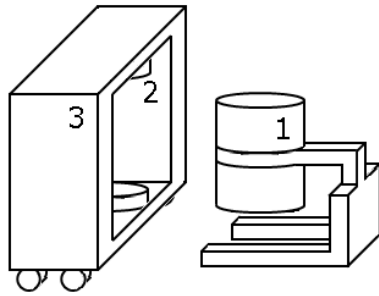


Abb. 7.2: Magnetsystem auf Basis einer wechselbaren Permanentmagnetpaarung (2), eingebracht in ein Joch (3). Das System kann zu weiteren Messungen des magnetfeldabhängigen Soret-Koeffizienten mit einer Thermodiffusionszelle (1) eingesetzt werden.

welches auf der Verwendung einer Permanentmagnetpaarung beruht, wie in Abbildung 7.2 skizziert. Die Thermodiffusionszelle (1) wird über einen Arm zwischen zwei Permanentmagnete (2) gehalten. Das Joch (3) sorgt für einen guten magnetischen Fluss zwischen den Magneten. Mit diesem Aufbau nimmt man sich zwar die Möglichkeit einer freiwählbaren Magnetfeldstärke, allerdings ist das System deutlich kompakter und ortsunabhängig im Vergleich zum Elektromagnet Bruker B E-25. Die Magnetanordnung ist um die Thermodiffusionszelle herum drehbar, was wie bisher sowohl eine parallele als auch senkrechte Ausrichtung des Magnetfelds zum Temperaturgradienten ermöglicht.

Da bei der Separationsmessung jeder Messpunkt durch Wegnahme des äußeren Magnetfelds bestimmt werden muss, ist dieses Magnetsystem auf Rollen gelagert. Dabei wird gleichzeitig garantiert, dass um die Thermodiffusionszelle nach Entfernen des äußeren Feldes, kein Einfluss auf die Sensorspulen aus Remanenzfeldern, wie beim Elektromagneten etwa, entstehen kann. Was das Arbeiten mit dem Elektromagneten, besonders bei mehrtätiger Messung, erschwert hat, sind die hohen Ströme, die den Magneten betreiben und welche bei Ausfällen des Kühlkreislaufes an den Spulen zur Überhitzung und Schädigung des Magneten und der Zelle führen können. Bei einer Permanentmagnetpaarung sind diese Aspekte irrelevant, so dass problemlos über mehrere Tage hinweg der Separationsprozess untersucht werden kann. Eine ständige Anwesenheit des Messenden während des Separationsprozesses wird damit überflüssig. Neben diesen experimentellen Aspekten ist auch eine Weiterentwicklung der theoretischen und numerischen Untersuchungen anzustreben. Bisher wird für die numerische Validierung des Separationsprozesses zur Reduktion des zu lösenden Gleichungssystems von einem konstanten Temperaturgradienten und einem homogenen Magnetfeld ausgegangen. Somit genügt es in einem solchen System die Diffusionsgleichung numerisch zu lösen. Allerdings besteht zwischen den Maxwell-

Gleichungen und der Diffusionsgleichung eine Kopplungsbeziehung über die konzentrationsabhängige Magnetisierung des Fluids. Diese Beziehung sollte in weiteren Validierungsschritten berücksichtigt werden. Weiterhin wird in dem reduzierten System eine Idealisierung des Magnetfeldverlaufs an den Rändern vorgenommen. Während die Tangentialkomponente des Magnetfelds an den Rändern konstant ist, ist dies bei der Normalkomponente des magnetischen Flusses der Fall. Die Normalkomponente des Magnetfelds weist am Rand einen Sprung auf, welcher in einer realen Umgebung stetig verläuft und somit an den Rändern zu einem Magnetfeldgradienten führt.

Neben einer Erweiterung des numerisch zu lösenden Gleichungssystems steht eine Erweiterung der numerischen Lösungsmethode an. Dabei kann eine Optimierung der Analyse über eine Gitterverfeinerung über dem Zellenquerschnitt durchgeführt werden. Dabei ist jedoch zu prüfen, ob sich die daraus ergebende Anzahl an Knotenpunkten mit dem vorliegenden GNU-Octave-Code effizient bearbeiten lässt. Des Weiteren könnte der gesamte Programmablauf in einen iterativen Prozess zur automatischen Bestimmung der Onsager-Faktoren eingebettet werden, bisher erfolgt dieser Fittingschritt manuell.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen zum Zusammenhang zwischen der thermomagnetischen Konvektion und der Thermodiffusion in Ferrofluiden erhöhen das Verständnis des Zusammenwirkens der Prozesse. Außerdem machen sie deutlich, dass besonders der thermodiffusive Prozess dabei die zentrale Rolle spielt. Die Frage, warum die Nanopartikel der magnetischen Flüssigkeit unter Einfluss von Magnetfeld und Temperaturgradient eine gerichtete Bewegung ausführen, bleibt weiterhin eine offene Frage - und nicht nur für diese Stoffklasse. Es ist aber die Vielzahl der bisher wenig untersuchten Einflüsse auf diesen Prozess aufgezeigt worden, woraus sich, wie im Ausblick dargelegt, neue sehr interessante Forschungsaufgaben zur Fortführung dieses Themas ableiten lassen.