



**TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DRESDEN**

Fakultät Maschinenwesen Institut für Strömungsmechanik, Professur für Magnetofluiddynamik

Dissertationsschrift

Kolloidabscheidungen im Tiefenfilter

Untersuchungen mit Röntgentomographie

Anja Waske

Betreuender Hochschullehrer:
Zweitgutachter:

Prof. Dr. rer. nat. habil. S. Odenbach
Prof. Dr.-Ing J. Thöming

Dresden, den 28.04.2011



Danksagung

Mein Dank an dieser Stelle gilt zuallererst Herrn Prof. Dr. Odenbach für die Betreuung dieser Arbeit und für seine Unterstützung während der Promotionszeit.

Herrn Prof. Dr. Thöming möchte ich für die Übernahme des Koreferates herzlich danken.

Die vorliegende Arbeit ist während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Magnetofluidynamik der Technischen Universität Dresden entstanden. Die Arbeit ist in das von der Deutschen Forschungsgemeinschaft finanzierte Graduiertenkolleg 1375 *Nichtmetallische poröse Strukturen für physikalisch-chemische Funktionen* (PoreNet) eingebunden. Es ist mir ein Bedürfnis, mich an dieser Stelle bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die großzügige Förderung des Projektes zu bedanken.

Ich kann an dieser Stelle nicht alle einzelnen Personen aufzählen, die während meiner Promotionszeit mit ihren Ideen, ihrer tatkräftigen Hilfe und ihrem kritischen Hinterfragen einen Beitrag dazu geleistet haben, dass es die vorliegende Arbeit gibt. Ich hoffe, die Gemeinten fühlen sich angesprochen; Ihnen möchte ich an dieser Stelle herzlich danken.

Meinen Kindern Lilly und Julius ist diese Arbeit gewidmet.

Inhaltsverzeichnis

Danksagung	i
Einleitung	iv
1 Röntgentomographie	1
1.1 Grundlegende Prinzipien	1
1.1.1 Erzeugung von Röntgenstrahlung	1
1.1.2 Röntgenröhren	1
1.1.3 Synchrotronstrahlung	4
1.1.4 Tomographische Bildgebung	6
1.1.5 Radon-Theorem	9
1.1.6 Fourier-Slice Theorem	10
1.1.7 Gefilterte Rückprojektion	12
1.2 Darstellung und Auswertung tomographischer Bilddaten	12
1.2.1 Digitale Bilder	14
1.2.2 Quantitative Analyse digitaler Bilder	15
2 Poröse Medien	21
2.1 Charakterisierung poröser Materialien	22
2.1.1 Porosität	22
2.1.2 Porosimetrie	23
2.1.3 Tomographische Charakterisierung poröser Medien	25
2.2 Kugelschüttungen	28
2.2.1 Mittlere Porosität	28
2.2.2 Lokale Ordnung	29
2.2.3 Porosität räumlich begrenzter Schüttungen	29
2.2.4 Kontaktwinkelverteilung	32
3 Tiefenfiltration	35
3.1 Filterverfahren und deren Anwendung	35
3.1.1 Oberflächenfiltration	35
3.1.2 Tiefenfiltration	37
3.2 Theoretische Beschreibung der Tiefenfiltration	38
3.2.1 Antransportmechanismen	38
3.2.2 Abscheidungsmechanismen	41
3.2.3 Wechselwirkung an Oberflächen	43

3.2.4 Empirische Filtergleichung nach Iwasaki	45
3.2.5 Abscheidung am Einzelkollektor	46
3.2.6 Partikelabscheidung an Kugel-Kugel-Kontakten	48
4 Experimentelle Aufbauten	51
4.1 Voruntersuchungen	52
4.2 Bildung von Kolloiden	54
4.3 Aufbau der Tomographieanlage	57
4.4 Aufbau der Filtrationszelle	60
4.5 Suspension und Volumenstrom	60
5 Ergebnisse und Diskussion	69
5.1 Bildverarbeitung der Tomogramme	69
5.2 Untersuchungen des Schüttbettes	72
5.3 Integrale Untersuchung der Partikelabscheidungen	76
5.3.1 Axiale Konzentrationsprofile	76
5.3.2 Radiale Konzentrationsprofile	79
5.4 3D-Untersuchung der Partikelabscheidungen	82
5.4.1 Größe der Abscheidungen	82
5.4.2 Position der Abscheidungen im Filter	84
5.5 Die Zuordnung zu einem Kollektor	88
5.6 Die Rolle der Kugel-Kugel-Kontakte	91
5.7 Einfluss der Partikelgröße und -form	97
5.8 Vergleich mit Simulationen	99
6 Zusammenfassung und Ausblick	103
7 Anhang	I
Literaturverzeichnis	III
Abbildungsverzeichnis	X
Tabellenverzeichnis	XII
Quellcodeverzeichnis	XIII

Einleitung

Sauberes Wasser ist ein kostbares Gut. Es ist das wichtigste Nahrungsmittel des Menschen und die Grundlage für alles Leben auf dieser Erde. Auch in der industriellen Produktion ist diese vielseitige Ressource von großer Bedeutung, sei es als Rohstoff, als Lösungsmittel oder Energieträger. Da die zur Verfügung stehende Menge Süßwassers begrenzt ist, muss Brauchwasser auf geeignete Art gereinigt bzw. aufbereitet werden. Dies geschieht in der Natur, indem Grundwasser bei seinem Transport durch den Boden gefiltert wird. Die technische Analogie dieses Prozesses ist die Tiefenfiltration, bei der mit kleinen Partikeln (Kolloiden) versetztes Wasser im Inneren eines Filters in eine feste und eine flüssige Phase getrennt wird.

Tiefenfiltration ist eine altbewährte Technologie, deren theoretische Beschreibung jedoch bis heute eine Herausforderung ist. Insbesondere ist es noch nicht möglich, aus den bekannten Kenngrößen des Filters und der Suspensionschemie das Filtrationsergebnis vorherzusagen. Das liegt unter anderem daran, dass für die Abscheidung von Kolloiden in einem porösen Filtermedium lokale Prozesse, die auf der Längenskala einer Einzelpore stattfinden, eine wichtige Rolle spielen. Die Untersuchung solcher Prozesse steht im Vordergrund zweier Forschungsprojekte, die im Rahmen des DFG-geförderten Graduiertenkollegs PoreNet (GK 1375) ins Leben gerufen wurden. Während sich das eine Projekt mit lokalen Particle-Image-Velocimetry Messungen (PIV) beschäftigt, um lokale Geschwindigkeitsfelder in Kugelschüttungen zu untersuchen, wird im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Ablagerung von Kolloiden in einer solchen Schüttung mithilfe von Röntgentomographie studiert.

Das Ziel der Arbeit ist es, eine Auswertemethodik für dreidimensionale Bilddaten zu entwerfen, mithilfe derer Aussagen über den Ablagerungsort von Kolloidclustern in einem Schüttbett gleich großer Kugeln getroffen werden können. Dabei wird die Auswertung der Cluster- bzw. Kugelverteilung zunächst auf zweidimensionalen Integrationsbereichen vorgenommen. Diese integrale Betrachtung der Komponenten erlaubt einen schnellen Überblick über die mittlere radiale bzw. axiale Verteilung von Kolloiden und Filterkörnern. Es schließt sich die 3D-Auswertung segmentierter Kolloidcluster an, die einen umfassenderen Blick auf die Abscheideorte von Partikeln zulassen, da hier die Eigenschaften jedes einzelnen Clusters bekannt sind. Im letzten Teil der Auswertung liegt der Fokus darauf, den Bezug der Abscheideorte der Kolloide zur Lage der Kontaktpunkte der einzelnen Filterkörner zu analysieren, da aktuelle Arbeiten nahelegen, dass diese Kontaktpunkte eine herausragende Rolle bei der Filtration im System Wasser-Kolloid spielen können.

Die Arbeit ist wie folgt aufgebaut: In Kapitel 1 werden zunächst die Grundlagen der verwendeten Bildgebungstechnik vorgestellt. Dazu gehört die Erzeugung von Röntgenstrahlen und die Bildgebung mit ihnen, das Prinzip der Röntgentomographie, sowie die Darstellung und Auswertung tomographischer Bilddaten. Im zweiten Kapitel wird erläutert, welche Eigenschaften poröse Medien auszeichnen und mit welchen Methoden diese charakterisiert werden. Weiterhin wird auf die Eigenheiten der hier betrachteten Kugelschüttungen eingegangen. Kapitel 3 behandelt die praktische Anwendung von Filtrationsverfahren sowie die theoretische Beschreibung der Tiefenfiltration. Hier wird insbesondere auf Aspekte eingegangen, für die die klassische Filtrationstheorie keine Aussagen liefert. Diese Ansatzpunkte sind für die weitere Diskussion von herausragender Bedeutung. Im vierten Kapitel werden die experimentellen Aufbauten beschrieben. Dazu gehört die auf das spezielle Problem angepasste Bildgebungsmethode, sowie der Aufbau der im Experiment verwendeten Apparate, wie Filterzelle und Röntgentomograph. Die experimentellen Strömungsbedingung sowie die Beschaffenheit von Partikeln und Suspension werden ebenfalls an dieser Stelle erörtert. In Kapitel 5 werden die Messungen vorgestellt und die Ergebnisse der Auswertung diskutiert. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Position und den Eigenschaften der Partikel und der Filterkugeln. Insbesondere die Zugehörigkeit einer Partikelabscheidung zu einem Kollektor wird in diesem Zusammenhang herausgearbeitet. Zum Schluss des Experimentkapitels wird die Lage der Kontaktpunkte zwischen jeweils zwei Filterkugeln ausgewertet und mit der Position der Abscheidungen verglichen. Die wichtigsten Resultate werden in der Zusammenfassung nochmals aufgeführt. Das Kapitel schließt mit einem Ausblick auf weiterführende Untersuchungen, die zur Analyse der herausgearbeiteten offenen Punkte Antworten liefern können.

1 Röntgentomographie

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der Bildgebung mit Röntgenstrahlen vorgestellt. Besonders wichtig ist hier das Prinzip der tomographischen Rekonstruktion, das den Zusammenhang zwischen den zweidimensionalen Absorptionsbildern und dem rekonstruierten dreidimensionalen Probenabbild herstellt. Ein weiterer Schwerpunkt ist die Darstellung und Auswertung tomographischer Bilddaten, denn hier werden Methoden vorgestellt, die bei der Auswertung der Filtrationsdaten genutzt werden.

1.1 Grundlegende Prinzipien

1.1.1 Erzeugung von Röntgenstrahlung

Röntgenstrahlen sind elektromagnetische Wellen mit einer Photonenenergie zwischen 100 eV und 1 MeV. Im elektromagnetischen Spektrum befinden sie sich damit zwischen dem langwelligeren ultravioletten Licht und den kurzwelligen Gammastrahlen. Röntgenstrahlen entstehen durch hochenergetische Elektronenprozesse in natürlichen oder technischen Röntgenquellen. Da es sich bei den natürlichen Röntgenquellen in erster Linie um astronomische Objekte handelt, kommen diese gewöhnlich nicht als Strahlenquelle für terrestrische Experimente in Betracht, da nur ein winziger Bruchteil der ursprünglich emittierten Strahlung überhaupt die Erde erreicht. Technische Röntgenquellen lassen sich in zwei unterschiedliche Klassen einteilen: man unterscheidet die in vielen Laboren benutzten Röntgenröhren und Synchrotronstrahlungsquellen, von denen es weltweit etwa zwei Dutzend gibt.

1.1.2 Röntgenröhren

In Röntgenröhren treffen beschleunigte Elektronen auf einen metallischen Festkörper, wobei sie abgelenkt und abgebremst werden. In Abbildung 1.1 ist der schematische Aufbau einer solchen Röhre zu sehen. Die Elektronen werden durch Glühemission an der Kathode freigesetzt und durch ein elektrisches Hochspannungsfeld stark beschleunigt. Beim Auftreffen auf die metallische Anode - das sogenannte Target - werden zwei Arten von Strahlung erzeugt: einerseits die charakteristische Strahlung, deren Wellenlänge vom Anodenmaterial abhängig ist; andererseits das kontinuierliche Bremspektrum, das abgegeben wird, wenn sich die Geschwindig-

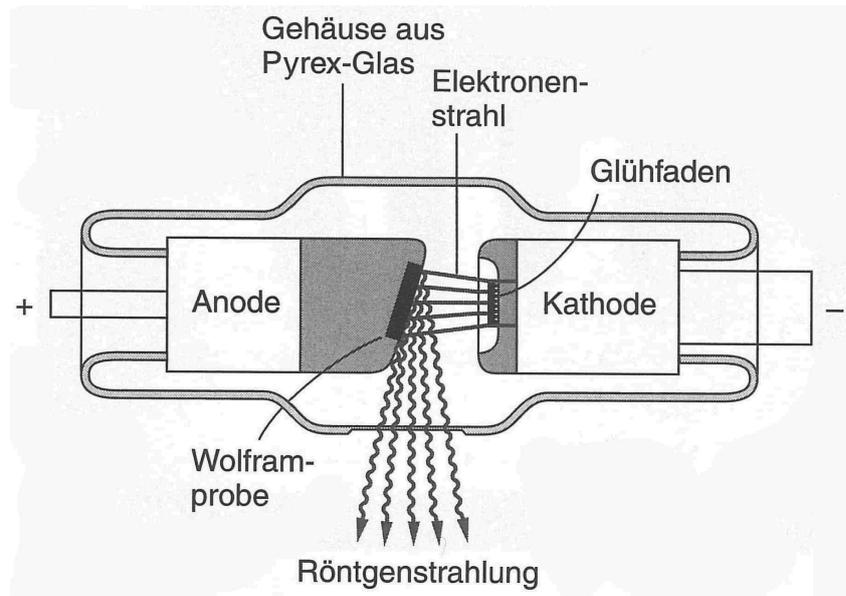


Abbildung 1.1: Schematischer Aufbau einer Röntgenröhre. Beschleunigte Elektronen treffen auf die Anode, wo sie Röntgenstrahlung erzeugen. Aus [1].

keit des Elektrons bei Stößen mit den Atomen des Targetmaterials verringert. Ein derart (negativ) beschleunigtes Elektron emittiert Energie in Form von Röntgenstrahlung. Diesen Vorgang kann man als Dipolabstrahlung auffassen, wenn der Abstand des Beobachtungsortes von der Quelle größer ist als die typischen Längenskalen, auf denen das Elektron die Beschleunigung erfährt [2]. Die Abstrahlung von Röntgenstrahlung ist richtungsabhängig, wobei das Maximum der Intensität unter einem Winkel von 90° zur Bewegungsrichtung zu beobachten ist.

Parallel zur Bewegungsrichtung ist die Abstrahlung Null. Dass die Emission von Bremsstrahlung trotzdem nahezu isotrop erfolgt, liegt an der Vielzahl von Stößen, die das Elektron benötigt, um seine kinetische Energie zu reduzieren. Da es im Verhältnis zu seinen Stoßpartnern, den Atomen des Targetmaterials, sehr leicht ist, wird bei jedem Stoß nur ein sehr kleiner Teil der kinetischen Energie des Elektrons abgegeben. Weil sich die Teilchenbahn bei jedem Stoß ändert, ergibt sich eine isotrope Abstrahlung, obwohl die Abstrahlung bei einem Einzelstoß eine ausgeprägte Richtungsabhängigkeit besitzt. Die Energie der abgestrahlten Röntgenphotonen kann dabei maximal so groß werden wie die Energie, die das eintreffende Elektron besitzt, wenn es die volle Beschleunigungsspannung U_{e^-} durchlaufen hat. Es gilt folglich:

$$E_{Ph}^{max} = E_{e^-} = eU_{e^-} \quad (1.1)$$

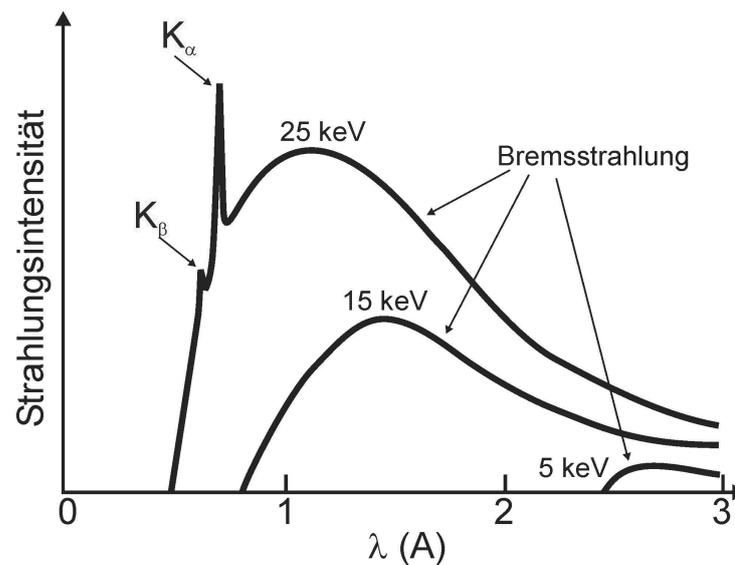


Abbildung 1.2: Typisches Spektrum einer Röntgenröhre für verschiedene Beschleunigungsspannungen. Das Bremsspektrum ist überlagert von scharfen Peaks der charakteristischen Strahlung. Aus [3].

Das bedeutet, dass die Wellenlänge der abgegebenen Strahlung einen Minimalwert hat:

$$\lambda_{min} = \frac{hc}{E_{Ph}^{max}} \quad (1.2)$$

In Abbildung 1.2 ist das typische Spektrum einer Röntgenröhre zu sehen. Der kontinuierliche Anteil der Röntgenstrahlung, dessen Intensität ausgehend von der minimalen Wellenlänge zunächst wächst, ein Maximum durchläuft und wieder abnimmt, heißt Bremspektrum. Wie in der Abbildung 1.2 zu sehen, werden bei bestimmten Energien zusätzliche Photonen mit einer schmalen Linienbreite emittiert. Diese charakteristische Strahlung entsteht, wenn Elektronen auf tiefliegenden Schalen (K, L) der Targetatome durch den Elektronenstrahl herausgeschlagen werden. Diese Leerstelle wird durch ein Elektron aus einer höheren Schale besetzt, wobei ein Röntgenphoton emittiert wird. Analog dazu ist die Notation, die für solche Prozesse verwendet wird, die folgende:

- Großbuchstaben (K, L, M,...) bezeichnen die Schale, in die das Elektron fällt.
- Griechische Buchstaben (α , β , ...) als Index bezeichnen die Herkunftsschale, wobei α die nächsthöhere Schale, β die übernächste usw. bezeichnet.

Die Energie des emittierten Photons entspricht der Differenz der dabei beteiligten Energieniveaus, welche spezifisch für das Targetatom ist. Daher spricht man von *charakteristischer* Strahlung. Die am häufigsten auftretenden Prozesse der charak-

teristischen Strahlung sind K_α und K_β , weil sie mit den niedrigsten auftretenden Energien verbunden sind.

Die räumliche Verteilung der Strahlung von Röntgenröhren ist für viele Untersuchungen von Nachteil, da in der Regel nur ein kleiner Raumwinkel genutzt wird und demnach der Großteil der Photonen verloren geht. Die polychromatische Natur der in Röhren erzeugten Strahlung führt darüber hinaus in vielen Fällen zu Artefakten bei der Bildgebung (Strahlaufhärtungsartefakte), da niederenergetische Anteile im Vergleich zu den höherenergetischen überproportional stark absorbiert werden. Dieser Effekt kann durch Monochromatisierung der Strahlung kompensiert werden. Allerdings wird dabei der Photonenfluss auf den Teil in einem schmalen Energieband verringert, was es schwierig macht, in akzeptabler Zeit eine aussagekräftige Statistik zu erhalten.

Beiden Problemen - der geringen Brillanz und der räumlichen Defokussierung - begegnet man am elegantesten durch die Verwendung von Synchrotronstrahlung.

1.1.3 Synchrotronstrahlung

Die elektromagnetische Dipolstrahlung einer beschleunigten Ladung ist bereits für niedrige Geschwindigkeiten ($\beta = \frac{v_{e^-}}{c} \ll 1$) abhängig von der Bewegungsrichtung, aber zu gleichen Anteilen in und entgegen der Bewegungsrichtung des Elektrons verteilt. Dies ändert sich, sobald die Geschwindigkeit des Elektrons sich der Lichtgeschwindigkeit nähert (vgl. Abbildung 1.3). Durch relativistische Effekte verschiebt sich mit zunehmender Geschwindigkeit der Winkel maximaler Intensität in die Vorwärtsrichtung der Elektronen. Für $\beta \approx 1$ wird die gesamte Strahlung in eine Strahlungs-„Keule“ mit einem Öffnungswinkel von $\Omega = \frac{2}{\gamma}$ emittiert, wobei $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}}$ ist. Für den hier betrachteten Speicherring DORIS III am Deutschen Elektronensynchrotron (DESY) beträgt die Divergenz Ω etwa 0,1 mrad bei $E = 4,5$ GeV, das sind ca. $0,005^\circ$. Man kann also in sehr guter Näherung von paralleler Strahlung sprechen. Die Konsequenz der starken Bündelung in einen engen Raumwinkel ist eine extrem hohe Brillanz der Strahlung. Unter Brillanz versteht man die Anzahl der Photonen N_{Ph} , die pro Raumwinkel Ω und Zeiteinheit Δt von einer Quelle mit der Quellfläche A emittiert werden. Betrachtet wird dabei eine Energiebandbreite (hc) von 0,1%. Die Einheit ist Units of Brightness (UB); sie ergibt sich folgendermaßen:

$$UB = \frac{N_{Ph}}{\Omega \Delta t A 0.1\% hc} \quad (1.3)$$

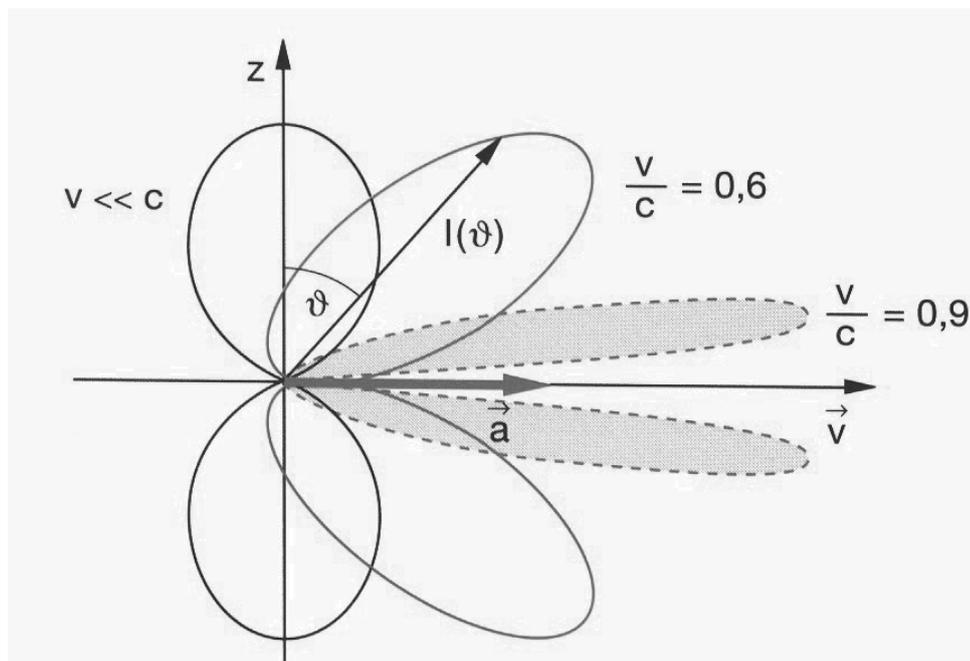


Abbildung 1.3: Abstrahlcharakteristik eines bewegten Dipols. Die Abstrahlung in Vorwärtsrichtung der Bewegung des Elektrons wird stärker, wenn sich die Geschwindigkeit der Lichtgeschwindigkeit annähert. Quelle: [4].

Die Brillanz von Synchrotronquellen ($UB = 10^{13} \dots 10^{23}$) liegt demnach um viele Größenordnungen über der von Röntgenröhren ($UB \approx 10^{12}$). Dies eröffnet die Möglichkeit, die entstehende Strahlung mit Hilfe eines Monochromators zu filtern, so dass am Probenort monoenergetische Strahlung mit hoher Flussdichte zur Verfügung steht.

Die Vorteile der Verwendung von Synchrotronstrahlung gegenüber Röhrenstrahlung im Bereich der Bildgebung sind zusammengefasst die folgenden:

1. Monochromatisierbarkeit

Die Verwendung monochromatischer Strahlung eliminiert das Auftreten von Strahlauhfärtungsartefakten, ferner erlaubt sie quantitative Aussagen über die Größe der Absorptionskoeffizienten einer Probe. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit ist darüber hinaus die Möglichkeit genutzt worden, mit definierten Photonenenergien in der Nähe von Absorptionskanten eines Elements zu arbeiten. Dies eröffnet einen Weg zur Steigerung des Kontrastes für dieses spezifische Element, so dass zum Teil auch Objekte identifiziert werden können, deren Größe unterhalb der Auflösungsgrenze der Anlage liegt.

2. Hoher Strahlungsfluss

Bedingt durch den hohen Photonenfluss ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis groß, was eine Senkung der Belichtungszeit bei gleichbleibend guter Datenqualität zur Folge hat. Dies ist insbesondere für die Aufnahme von Tomogrammen von Vorteil, weil dabei viele hundert Projektionen aufgenommen werden müssen.

3. Parallelität

Durch den quasi-parallelen Röntgenstrahl ist eine Unabhängigkeit der einzelnen Tomogrammschichten voneinander gegeben. Das bedeutet insbesondere, dass die Rekonstruktion dieser Schichten unabhängig voneinander, zum Beispiel auf mehreren Prozessoren, erfolgen kann.

Bei allen Vorteilen der Synchrotronstrahlung sollte man auch auf zwei wesentliche Nachteile hinweisen. Durch die geringe Divergenz der Strahlung ist der Strahlquerschnitt klein, mit einer Kantenlänge die meist in der Größenordnung von wenigen Millimetern liegt. Da für eine tomographische Aufnahme die gesamte Probe gleichzeitig durchleuchtet werden muss, ist die Probengröße a priori beschränkt. Für viele Experimente stellt dies eine erhebliche Einschränkung dar, weil viele Phänomene abhängig von der Probengröße sind und somit unter Umständen nicht mehr beobachtet werden können. Dies kann zum Teil dadurch kompensiert werden, dass man die Probe in mehreren Schichten tomographiert und diese anschließend kombiniert. Der damit verbundene zeitliche Aufwand ist erheblich, und somit ist diese Methodik, bei eingeschränkter Verfügbarkeit der Quellen, nur bedingt anwendbar.

1.1.4 Tomographische Bildgebung

Röntgen-Computertomographie ist ein Verfahren, bei dem aus einer Serie zweidimensionaler Projektionen ein dreidimensionales Bild vom Inneren eines Gegenstands erzeugt wird. Die dafür verwendete Strahlung ist die im vorangegangenen Abschnitt beschriebene Röntgenstrahlung. Ihrem Entdecker, dem Physiker Wilhelm Conrad Röntgen, gelang 1895 als erstem die Darstellung eines Gegenstandes mit Hilfe dieser von ihm als solche bezeichneten X-Strahlen. Schon beim Betrachten einer solchen *Projektion* werden intuitiv die wichtigsten Eigenschaften dieser Strahlung klar (vgl. Abbildung 1.4). Zum einen ist diese offenbar in der Lage, Materie zu durchdringen, denn man sieht deutlich die Knochen der Hand. Andererseits hängt die Absorption der Strahlung offenbar von der Dichte des Materials ab, denn die unterschiedlich dichten Komponenten des Bildes (Knochen, Gewebe, Ring) zeigen deutlich voneinander verschiedenen Grauwerte. Die Absorption von



Abbildung 1.4: Röntgenaufnahme: Albert von Koellikers Hand, aufgenommen von Conrad Röntgen am 23. Januar 1896. Quelle: [5].

Röntgenstrahlung ist jedoch nicht nur von der Dichte des Materials abhängig. Folgende zwei Prozesse sind im betrachteten Energiebereich ($E < 1 \text{ MeV}$) für die Abschwächung der Strahlung verantwortlich:

1. Photoabsorption

Wenn ein Röntgenphoton ein kernnahes Elektron in einen höheren Energiezustand befördert, spricht man von Photoabsorption. Dabei wird das Photon vernichtet und gibt seine komplette kinetische Energie an das Atomelektron ab. Ein starker Anstieg der Photoabsorption wird immer dann beobachtet, wenn die Energie der Photonen gerade ausreicht, um Elektronen aus der jeweils nächst höheren Elektronenschale auszulösen. Man spricht in diesem Zusammenhang von *Absorptionskanten*.

2. Compton-Streuung

Diese Wechselwirkung eines Röntgenphotons mit äußeren, schwach gebundenen Elektronen ist in der Regel inelastisch, d.h. mit einer Energieabgabe des Photons verbunden. Darüber hinaus ändert das Photon beim Stoß seine Richtung, es verlässt die Primärstrahlrichtung und taucht an anderer Stelle wieder auf. Dies ist im Bild als Rauschen wahrzunehmen.

Im Photonen-Energiebereich bis etwa $E = 200 \text{ keV}$ dominiert die Photoabsorption gegenüber der Compton-Streuung. Der lineare Absorptionskoeffizient, welcher die Schwächung der Strahlung beschreibt, hat für diese Photonenenergien in guter Näherung folgende Abhängigkeit von der Materialdichte ρ , der Kernladungszahl Z

und der Photonenenergie E :

$$\mu \propto \rho \frac{Z^4}{E^3} \quad (1.4)$$

Die sich geradlinig ausbreitende Röntgenstrahlung wird also von Objekten mit großer Dichte und Kernladungszahl sehr gut absorbiert, wobei sich die Intensität der einfallenden Strahlung exponentiell verringert. Dieser Intensitätsabfall wird - wie bei sichtbarem Licht - durch das Beer-Lambertsche Gesetz beschrieben. Demnach sinkt die Zahl der einfallenden Photonen N_0 nach Durchdringen der Strecke x auf:

$$N(x) = N_0 \exp \left(- \int_{\text{Pfad}} \mu(x) dx \right) \quad (1.5)$$

Gleichung 1.5 gilt jedoch nur für monochromatische Strahlung, da die Absorption stark von der Energie abhängt (siehe Ausdruck 1.4). Bei polychromatischen Röhrenquellen *ändert* sich das Spektrum während die Strahlung die Probe durchläuft. Deshalb gibt es für diesen Fall eine zusätzliche Abhängigkeit von der spektralen Photonendichte $S(E)$ der einfallenden Strahlung:

$$N(x) = \int S(E) \exp \left[- \int_{\text{Pfad}} \mu(x, E) dx \right] dE \quad (1.6)$$

Der experimentelle Versuchsaufbau, um die nach obigen Gesetzmäßigkeiten entstehenden Röntgen-Projektionsbilder zu erzeugen, besteht aus den drei Komponenten Strahlenquelle, Objekt und Bildgebungseinheit. In Abbildung 1.5 ist dieser prinzipielle Versuchsaufbau illustriert. Die Bildgebung der durch das Objekt geschwächten Röntgenstrahlung erfolgt meist über den Umweg der Umwandlung in sichtbares Licht mithilfe eines Fluoreszenzschirms, und der nachfolgenden Abbildung dieses Lichts durch eine digitale Kamera. Die Information, die in einem Projektionsbild steckt, ist demnach entlang der Durchstrahlungsrichtung gemittelt. Dadurch können beispielsweise Objekte, die sich auf demselben Integrationspfad befinden, in einer Projektion nicht voneinander unterschieden werden. Um die innere Struktur der Probe zerstörungsfrei dreidimensional abzubilden, werden mehr Informationen

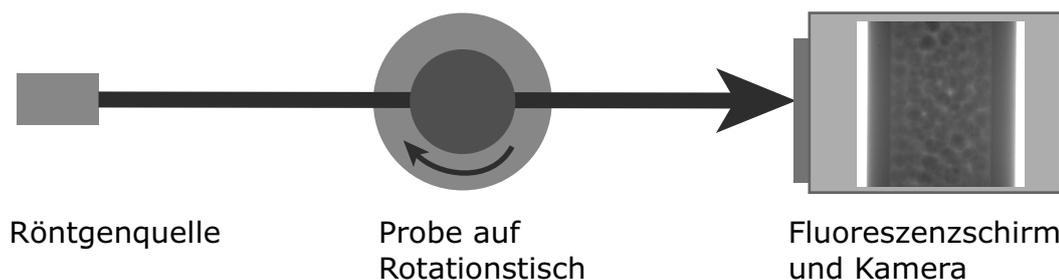


Abbildung 1.5: Schematische Darstellung des Aufbaus einer Tomographieanlage.

benötigt, die man in geeigneter Weise miteinander kombiniert.

1.1.5 Radon-Theorem

Der österreichische Mathematiker Johann Radon veröffentlichte bereits 1917 einen Beitrag zur Sitzung der Akademie der Wissenschaften zu Leipzig mit dem Titel „Über die Bestimmung von Funktionen durch ihre Integralwerte längs gewisser Mannigfaltigkeiten“. Die darin beschriebene Integraltransformation -heute nach ihrem Entdecker als *Radontransformation* bezeichnet - bildet die mathematische Grundlage der Tomographie. Sie beschreibt, wie die zweidimensionale Verteilung einer Funktion sich durch eine Schar Linienintegrale dieser Größe darstellen lässt. Der umgekehrte Fall, nämlich die Ermittlung der ursprünglichen zweidimensionalen Funktion aus den Projektionen, heißt *tomographische Rekonstruktion*.

Dabei beruhen viele Algorithmen zur dreidimensionalen Bildrekonstruktion [6, 7] darauf, dass man ein Bild gleichermaßen im *Ortsraum* als auch im Frequenz- oder *Fourier-Raum* darstellen kann. Beide Darstellungsarten sind gleichwertig und vollständig (siehe Abbildung 1.6).

Die Umrechnung einer zweidimensionalen Ortsfunktion $f(x,y)$ in die entsprechende Frequenzfunktion $F(u,v)$ ist durch die sogenannte *Fourier-Transformation* definiert:

$$F(u, v) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x, y) e^{-i2\pi(ux+vy)} dx dy \quad (1.7)$$

Die Wahrnehmung von Bildern im Fourier-Raum ist zunächst ungewohnt, tatsächlich sind aber in einer Fourier-Darstellung alle Informationen des Bildes enthalten.



Abbildung 1.6: Ortsraumaufnahme (links) versus Frequenzraumdarstellung desselben Bildes (rechts). Quelle: [8]

Zumal kann diese Darstellung frequenzrelevante Informationen sogar besser vermitteln als das Ortsraumbild. In einem Fourier-transformierten Bild, dessen Intensitätswerte dem Realteil des komplexen Resultats der Fourier-Transformation entsprechen, liegen tiefe Ortsfrequenzen im Zentrum und hohe Ortsfrequenzen in den Randbereichen des Bildes. Bei einem durchschnittlichen Fourier-Bild ist deshalb ein Signalmaximum im Zentrum, dem Ursprung der Frequenzachse, zu beobachten, das die großskaligen Bildmerkmale repräsentiert. Treten im Bild kleinskalige Merkmale auf, wie z.B. ein feines Linienmuster, erscheint dies als hochfrequenter Beitrag im Fourier-Bild, also weiter außen. Aufgrund der begrenzten Ortsauflösung digitaler Bilder fällt die Signalintensität zum Rand hin ab und geht schließlich ins Rauschen über, was einer linearen Abhängigkeit zwischen Intensitätswert und Frequenz entspricht. Anhand der Frequenzlage dieses Übergangs zwischen Signal und Rauschen ist es möglich, eine Ortsauflösung für das Bild auszurechnen [9].

1.1.6 Fourier-Slice Theorem

Für viele Methoden der tomographischen Rekonstruktion spielt das Fourier-Slice-Theorem eine Schlüsselrolle. Es beschreibt den Zusammenhang zwischen Projektionen des Untersuchungsobjektes im Ortsraum mit dem Fourier-transformierten Objekt im Fourier-Raum. Zur Veranschaulichung sei in Abbildung 1.8 eine Prinzipskizze gezeigt. Der Intensitätsverlauf der Projektionen unter dem Winkel Θ über dem Querschnitt t des Objektes mit der (unbekannten) Objektfunktion $f(x,y)$ wird Fourier-transformiert. Die so erhaltene Funktion $F(P(\Theta, t))$ wird im Fourier-Raum unter dem Winkel Θ aufgetragen, der dem Projektionswinkel im Ortsraum entspricht. Auf diese Weise werden die Informationen für jeden Winkel aufgetragen, so dass die Information der Projektionen sukzessive im Fourier-Raum akkumuliert wird. Die Berechnung der ursprünglichen Objektfunktion - die tomographische Rekonstruktion - erfolgt dann durch inverse Fourier-Transformation.

Um die inverse Fourier-Transformation numerisch durchführen zu können, müssen die polar aufgetragenen Intensitätsdaten $F(P(\Theta, t))$ auf ein kartesisches Gitter abgebildet werden. Dabei wird interpoliert, und in Kauf genommen, dass die Signaldichte im Frequenzraum durch die diskrete Anzahl an Projektionen sehr unterschiedlich ist. Die im Fourier-Raum gesammelten Projektionen bilden ein sternförmiges Muster, d.h. bei niedrigen Frequenzen nahe des Koordinatenursprungs ist die Signaldichte noch sehr hoch, während sie für steigende Frequenzen abnimmt (siehe Abbildung 1.7). Das bedeutet, dass die Interpolation für hohe Frequenzen stärkere Abweichungen von den Projektionsdaten erzeugt als bei niedrigen. Dies bildet neben der

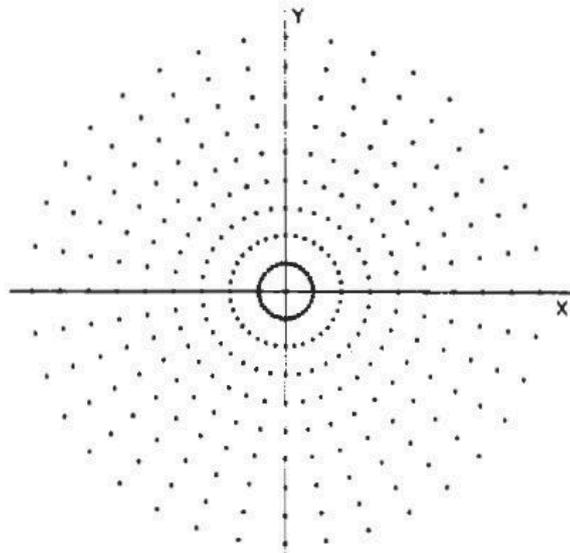


Abbildung 1.7: Visualisierung der Datendichte im Fourier-Raum: bei höheren Frequenzen existiert weniger Information als bei tieferen Frequenzen.

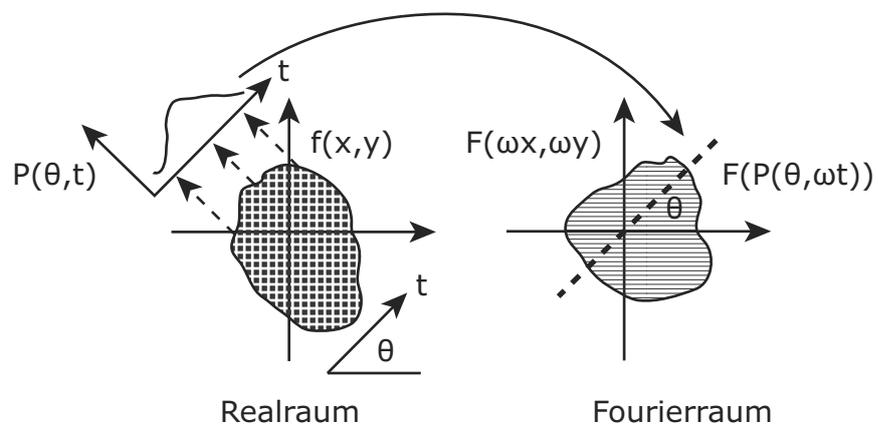


Abbildung 1.8: Illustration des Fourier-Slice-Theorems. Nach: [10].

ohnehin nur diskreten Abtastung des Fourier-Raums durch die Projektionen eine Schranke für die Ortsauflösung des Tomogramms.

1.1.7 Gefilterte Rückprojektion

Die durch das Fourier-Slice-Theorem definierte Möglichkeit, die Ortsfunktion des Objektes zu rekonstruieren, kann man anschaulich als *zurück projizieren* der Absorptionsbilder verstehen. Als gedankliche Stütze könnte man sich vorstellen, man würde ein Diabild der Projektion aus der Richtung, aus der es aufgenommen wurde, in das Zentrum projizieren, wo das Objekt als Summe der einzelnen Diaprojektionen entsteht. Dabei ist intuitiv klar, dass z.B. ein Detail in einem Projektionsbild nicht nur zu seinem ursprünglichen 3D-Ort beiträgt, sondern zur ganzen Pfadlänge der Projektion entlang des entstehenden Objektes. Dabei entstehen unscharfe, verwaschene Konturen der einzelnen Details. Dieses methodenbedingte Artefakt kann man kompensieren, wenn man die sogenannte gefilterte Rückprojektion anwendet. Dabei werden die Projektionsdaten im Fourier-Raum mit einem sogenannten Faltungskern multipliziert, welcher die Objektkanten betont. Es entstehen Über- und Oberschwinger an allen Objektkanten; langreichweitige Signalbeiträge werden ausgeglichen. Die Wahl des Faltungskerns trägt dabei entscheidend zur Bildcharakteristik bei: diese kann weich und glättend, dafür aber mit wenig Rauschen behaftet, oder stark kantenbetonend, um den Preis eines höheren Rauschens, sein.

Weiterführende Details zu tomographischen Methoden und tomographischen Rekonstruktionsalgorithmen können zum Beispiel bei Kak und Slaney [7] oder von Herman [11] gefunden werden.

1.2 Darstellung und Auswertung tomographischer Bilddaten

Die im vorangegangenen Kapitel dargestellte *tomographische Rekonstruktion* erzeugt zweidimensionale Schichtbilder, die - als Bildstapel angeordnet - das dreidimensionale Objekt repräsentieren. Die Betrachtung der Daten kann erfolgen, indem der Bildstapel durchgeblättert wird, oder indem aus den zweidimensionalen Daten eine dreidimensionale Darstellung errechnet wird. Bei letzterem spricht man vom sogenannten *rendern*. Ein Beispiel für ein solches gerendertes Tomogramm ist in Abbildung 1.9 zu sehen. Für den Menschen, der es gewohnt ist, zweidimensionale Bilder als dreidimensionale Informationen zu interpretieren, bietet eine gerenderte Darstellung quasi die natürliche Ansicht des Objektes. Dabei muss man beachten

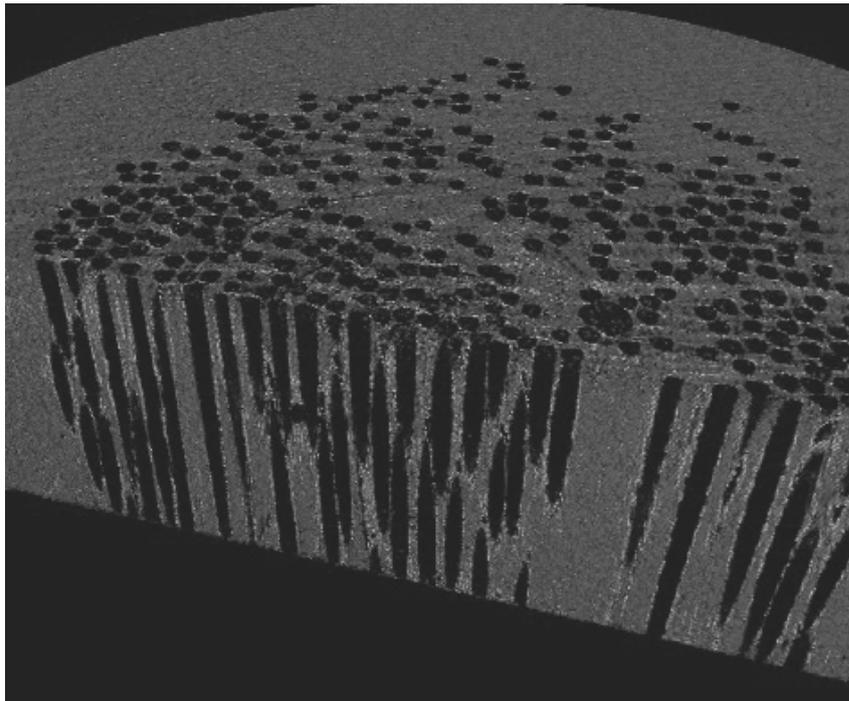


Abbildung 1.9: Rendering einer Silikonkapillaren

dass der Mensch durch seine starke visuelle Prägung ein Objekt zum großen Teil intuitiv und reflexhaft erfasst. Beispielsweise werden einzelne Bildpixel häufig schon unterbewusst zu Gruppen zusammengefasst, was das Erfassen einer Objektstruktur erleichtert. Das Sehen an sich stellt also genau genommen schon einen äußerst komplexen Schritt in Richtung Bildverarbeitung dar. Das erfährt man schnell, wenn man versucht, ein Computerprogramm mit diesen Fähigkeiten zu entwerfen. Als *Bildverarbeitung* bezeichnet man dabei die Behandlung von Bildern mit den Mitteln der Signalverarbeitung, mit Ziel, aus einem Bild möglichst objektiv Informationen zu extrahieren. Messungen in Bildern stellen aber nicht per se durch das Fehlen des bewertenden Gehirns eine zweitklassige Methode zur Bildbeurteilung dar; mitunter sind durch einfache Messungen schnell sogenannte optische Täuschungen zu entlarven. Zum Beispiel erscheinen in Abbildung 1.10 zwei graue Quadrate gleicher Grauwertstufe unterschiedlich hell, je nachdem ob sie vor weißem oder schwarzem Hintergrund betrachtet werden. Im Gegensatz zum Menschen, der die Graustufe relativ zu ihrer Umgebung beurteilt, wird eine Messung hier zum - korrekten - Ergebnis kommen, dass die Quadrate gleiche Grauwerte besitzen. Eine objektive Messung von Bildinhalten ist also für deren wissenschaftliche Beurteilung unerlässlich.

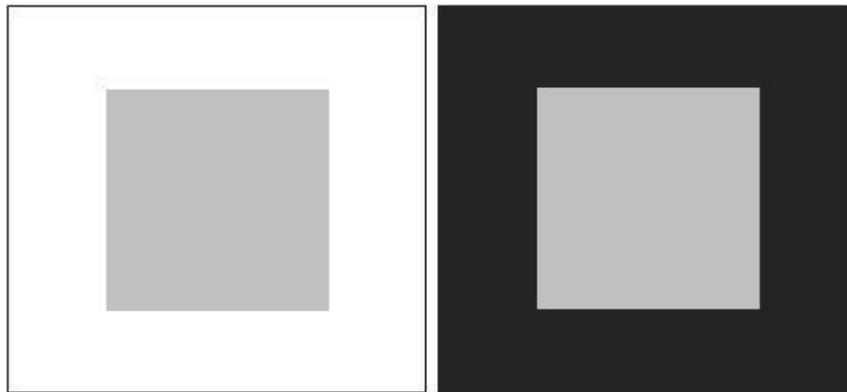


Abbildung 1.10: Optische Täuschung bei vergleichender Grauwertbeurteilung. Das graue Quadrat auf hellem Hintergrund erscheint dunkler als das gleiche Quadrat auf dunklem Hintergrund.

1.2.1 Digitale Bilder

Ein digitales Bild ist eine zweidimensionale, diskretisierte Abbildung eines analogen Intensitätssignals. Die Diskretisierung bezieht sich dabei sowohl auf den Ort, der rasterähnlich in eine Matrix aufgeteilt wird, als auch auf das Intensitätssignal, dessen Betrag mit einer bestimmten Bit-Tiefe dargestellt wird. Wenn man das für Bilder übliche Koordinatensystem verwendet, in dem der Koordinatenursprung in der linken oberen Ecke ist, so werden die Bildintensitäten I jeweils einem diskreten Raumkoordinatenpaar (x,y) zugeordnet. Die Darstellung des Bildes erfolgt durch sogenannte *Pixel*, die als Quadrate gleicher Intensität das kleinste Bildelement darstellen. Eine tomographische Schicht ist ebenfalls ein digitales Bild, wobei der Intensitätswert I einer Funktion des Röntgen-Schwächungskoeffizienten μ entspricht:

$$I(x,y) = f(\mu(x,y)) \quad (1.8)$$

Der Grauwert I wird in einem Tomogramm meist mit $N=8$ Bit dargestellt. Das bedeutet, dass das Spektrum der Intensitätswerte mit $2^N = 256$ verschiedenen Grauwertstufen abgebildet werden kann. Allerdings ist das menschliche Auge lediglich in der Lage, etwa 15...25 Graustufen zu unterscheiden, und das auch nur, wenn jeweils zwei Grauwertflächen direkt nebeneinander betrachtet werden. In Simultanwahrnehmung, also z.B. beim Betrachten einer Fotografie oder auch einer Tomogrammschicht, werden noch etwa 8 bis 12 Grauwerte unterschieden. Das bedeutet, dass eine 8Bit-Darstellung von Grauwerten durch den Betrachter überhaupt nicht vollständig wahrgenommen werden kann. Etwas besser verhält es sich dagegen mit der menschlichen Farbwahrnehmung, bei der in Simultandarstellung immer-

hin 15 Farbtöne mit jeweils von der konkreten Farbe abhängigen verschiedenen Sättigungsstufen unterschieden werden können. Daher benutzt man für die Visualisierung im Tomogramm meist Farbkarten, sogenannte *look-up tables (LUT's)*. Bei diesen handelt es sich um eine Zuordnungstabelle, die ähnlich einer mathematischen Abbildung dem jeweiligen Grauwert eineindeutig eine Farbe zuordnet. Die Abbildung kann man mit geeigneten Darstellungsprogrammen (z.B. VG Studio Max) leicht selbst definieren und somit nach rein subjektiven Kriterien des Betrachters verschiedenen Komponenten unterschiedliche Farben zuweisen. Für eine Visualisierung ist diese Vorgehensweise häufig ausreichend; sollen aber aus den Bildern quantitative Aussagen abgeleitet werden, ist eine weitführende Behandlung der Bilddaten notwendig.

1.2.2 Quantitative Analyse digitaler Bilder

In diesem Abschnitt sollen einfache Möglichkeiten aufgezeigt werden, ein digitales Bild quantitativ zu untersuchen. Für verschiedene Aufgaben ist es dabei von Bedeutung, innerhalb eines Bildes Trends oder Verläufe zu identifizieren. Hier ist das Erzeugen eines *Bildprofils* von Nutzen; dabei werden die Intensitätswerte des Bildes auf einen beliebigen Pfad innerhalb des Bildes projiziert. Im einfachsten Fall eines horizontalen oder vertikalen Pfades wird einfach eine Zeile oder Spalte von Pixelwerten ausgelesen (siehe Abbildung 1.11 links). Für ungeradlinige Pfade müssen die Intensitätswerte, die zu den durch den Pfad vorgegebenen Bildorten (markiert durch Punkte in Abbildung 1.11) gehören, erst berechnet werden. Dies geschieht durch lineare oder höhergradige Interpolation benachbarter Pixel.

Bildprofile werden oft für weiterführende Analysen genutzt, wobei man sich zum Beispiel für Übergänge zwischen hellen und dunklen Bildbereichen interessiert, um eine räumliche Zuordnung bestimmter Bildelemente zu ermöglichen. In Abbildung 1.12 ist der vertikale Grauwertverlauf einer partiell mit Flüssigkeit gefüllten Membran zu sehen. Deutlich ist zu erkennen, dass der Bereich mit Flüssigkeitsspiegel wesentlich dunklere Grauwerte (d.h. niedrigere Grauwert-Beträge) aufweist als solche Bereiche ohne Flüssigkeit; dazwischen befindet sich ein Grauwert-Übergang. Eine Lokalisierung der Flüssigkeitsfront ist in dieser Darstellung objektiver als durch bloßes Betrachten zu erreichen.

Eine wichtige Anwendung solcher Bildprofile ist die Bestimmung der Ortsauflösung optischer System mithilfe der sogenannten *Modulationstransferfunktion (MTF)*. Bei diesem Verfahren wird eine Kante abgebildet, deren Grauwertverlauf zuerst mit einem Kantenfilter verstärkt und dann untersucht wird. Man transformiert dazu das senkrecht zur Kante extrahierte Bildprofil in den Fourier-Raum und bestimmt

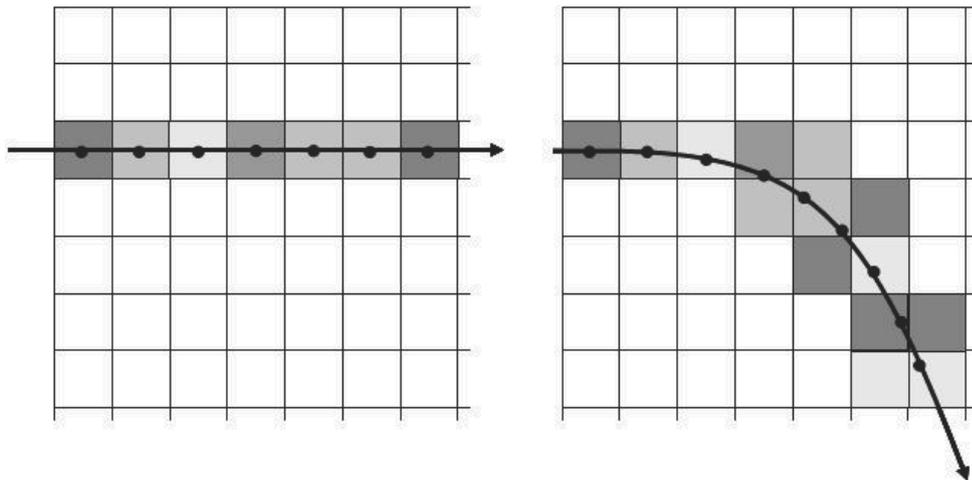


Abbildung 1.11: Berechnen eines Bildprofils: für vertikale oder horizontale Pfade können die Pixelwerte direkt übernommen werden. Für ungeradlinige Pfade müssen die Werte zwischen benachbarten Pixeln interpoliert werden.

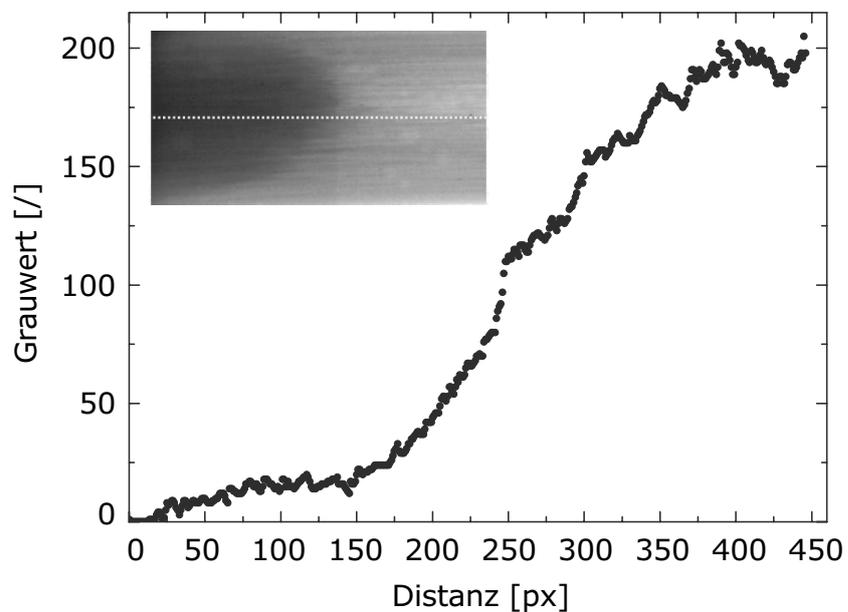


Abbildung 1.12: Flüssigkeitsaufstieg in zylindrischen Silikonkanälen. Die gestrichelte Linie markiert den Pfad, entlang dessen das Grauwertprofil aufgenommen wurde.

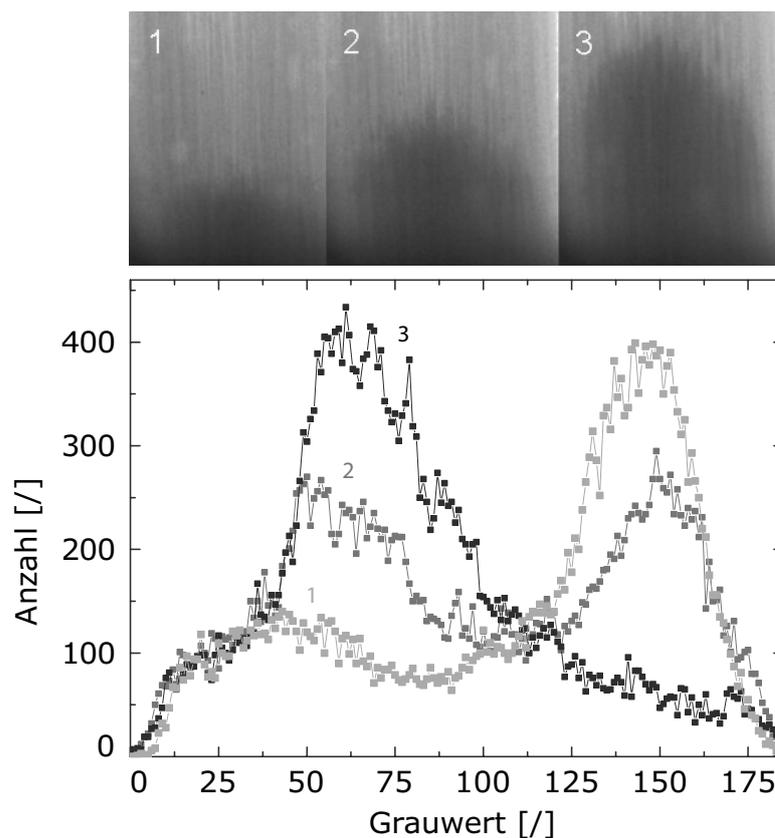


Abbildung 1.13: 2D Flüssigkeitsaufstieg. Veränderungen im Histogramm der Bilder 1-3 je nach Stand des Flüssigkeitsspiegels in der Kapillare.

eine Grenzfrequenz, oberhalb derer das Signal in Rauschen übergeht. Die Grenzfrequenz wird häufig für den Wert ermittelt, bei dem die Modulationstransferfunktion des Ausgangssignals auf ein Zehntel abgefallen ist (f_{10}). Diese Grenzfrequenz wird in eine Längeneinheit umgerechnet, und als Maß für die Auflösung des optischen Systems verwendet, vergleiche [9].

Ein digitales Bild besteht aus einer Pixelmenge, deren Grauwerte nicht nur in örtlicher Reihenfolge (also als Bildprofil) interessant sind, sondern auch in ihrer Gesamtheit. Einen raschen Überblick über die in einem Bild vertretenen Grauwerte bekommt man, indem man sich ein *Histogramm* erzeugt. Ein Histogramm ist eine Darstellungsart für Daten, die statistischer Natur sind: in diesem Fall wird die Häufigkeit, mit der ein Grauwert in einem Bild auftritt, über dem betrachteten Grauwertbereich dargestellt (siehe Abbildung 1.13). Die im Bild enthaltene Ortsinformation wird bei einer Histogrammberechnung vernachlässigt.

Im Fall eines konkreten Tomogramms ist es oft so, dass die einzelnen Komponenten, die im Bild enthalten sind, auch verschiedene Grauwerte besitzen. Diese haben zwar eine gewisse Streubreite, können aber dennoch anhand des am häufigsten auftretenden Grauwertes einer Komponente (man spricht in diesem Zusammen-

hang auch von Phase) zugeordnet werden. Im Histogramm äußert sich dies, indem klare, voneinander getrennte Peaks im Häufigkeitsverlauf auftreten. Basierend auf einer solchen scharfen Grauwerttrennung der einzelnen Komponenten kann man im Bild relativ gut *Schwellwerte* setzen, das heißt das Bild mit dem Ziel der Phasentrennung *binarisieren* und verschiedene Grauwertintervalle zu einzelnen Objekten zusammenfassen. Trivial ist diese Zuordnung keineswegs, vor allem bei Materialien, die ähnliche Grauwert-Mediane besitzen, wie zum Beispiel biologisches Gewebe im Röntgenabsorptionskontrast. Hier ist schon im Histogramm zu beobachten, dass eine relative Gleichverteilung eine derartige Schwellwertbildung erschwert. In binären Systemen wie Metallschäumen, porösen Keramiken oder Kugelschüttungen jedoch ist die Zuordnung von Grauwerten zu einem bestimmten Material häufig eine leichte Aufgabe. In Abbildung 1.13 sind die Histogramme dreier Absorptionbilder des Flüssigkeitsaufstiegs in einer porösen Silikonmembran dargestellt. Bei der Membran handelt es sich um die in Abbildung 1.9 dargestellte Probe. Die Histogramme spiegeln dabei wider, wie sich die Veränderung des Flüssigkeitsspiegels auf die im Bild vorhandenen Grauwerte auswirkt. Einerseits sinkt die Zahl der hellen Pixel, die in diesem Fall dem Hintergrund bzw. der ungesättigten Kapillaren entsprechen. Gleichzeitig steigt die Zahl der dunklen Pixel, was das Voranschreiten der Wasseroberfläche in der Membran signalisiert. Mithilfe von Schwellwertbildung und Auszählen der erhaltenen Pixel, die Wasser repräsentieren, kann man aus zeitabhängigen Daten des Flüssigkeitsaufstiegs und Annahmen über die Form der abgebildeten Wassersäule die Höhe des Flüssigkeitsspiegels über der Zeit abschätzen.

Für Tomogramme, die mit Hilfe von Synchrotronstrahlung erzeugt wurden, zeigt das Histogramm einer einzelnen Komponente einen Gaußkurven-Verlauf. Treten in einer Probe mehrere Materialien auf, die sich zudem in ihrem Absorptionskoeffizienten hinreichend unterscheiden, kann man gewöhnlich durch Gaußfits an die einzelnen Peaks gut das Histogramm des Einzelmaterials wiedergeben und eine klare Trennung der Materialien vornehmen. Durch Ermittlung der Schnittpunkte der einzelnen Gaußkurven kann man die Schwellwertbildung zudem auf reproduzierbare Annahmen begründen. Es sind sehr viele Methoden, Schwellwerte zu bilden, bekannt [12]. Dabei ist jedoch die optische Beurteilung durch den Menschen ein unerlässliches Korrektivum. Zusammenfassend lässt sich vielleicht sagen, dass es keine universelle Schwellwertbildung für alle Systeme gibt, und vor allem: dass keine der existierenden Binarisierungsmethoden perfekt ist.

Ist ein Bild binarisiert, existiert nunmehr lediglich noch eine Phase, welche die jeweilige Probe repräsentiert und im weiteren Verlauf betrachtet wird. Häufig trifft man nach der Binarisierung auf das Problem, dass Objekte, die eigentlich sepa-

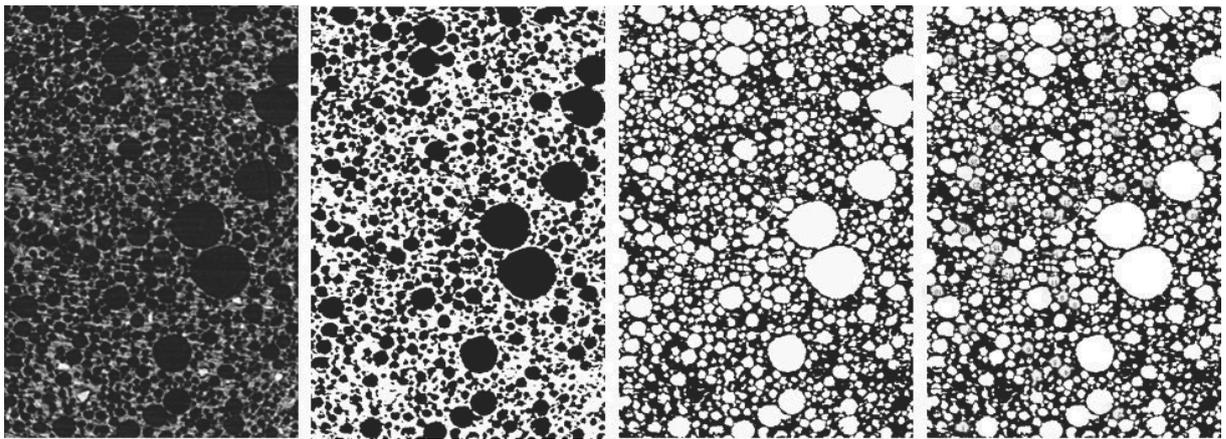


Abbildung 1.14: Bildverarbeitungsstadien (v.l.n.r): Rohbild der Tomogrammschicht, binarisiertes Bild, segmentierte Poren, markierte Poren.

rat erscheinen müssten, weiterhin gemeinsame Pixel haben und damit von jedem Programm als *ein* Objekt behandelt werden. Dies ist eine bedeutende Fehlerquelle für die im Anschluss an Segmentierungen gewöhnlich stattfindenden Messungen im Bild, denn ein Programm ist im Gegensatz zum Menschen nicht in der Lage, Objekte automatisch zu gruppieren. Daher sollte sich zuerst ein Bildverarbeitungsschritt anschließen, der als *Segmentierung* bezeichnet wird. Die bekannteste Methode zum Separieren konvexer, einander berührender Objekte ist der sogenannte *Watershed-Algorithmus* [13]. Er basiert auf der sequentiellen Erosion der sogenannten *euklidischen Distanztransformierten* (EDT). Die EDT wird aus einem binären Bild (Vordergrund = schwarz) berechnet, indem jedem schwarzen Pixel ein Grauwert zugewiesen wird, der proportional zum Abstand dieses Pixels vom nächstliegenden Hintergrundpixel ist. Diese neue Grauwertkarte kann man sich nun als dreidimensionales Relief vorstellen, als eine Art Grauwertlandschaft, in der helle Pixel Vertiefungen entsprechen. Diese Vertiefungen sind nun der Ausgangspunkt für die Segmentierung der Objekte: der Grauwert wird schrittweise verringert und die dabei von einem Objekt eingenommene Fläche registriert. Treffen nun zwei verschiedene Objekte aufeinander, wird an dieser Stelle der Grauwert gleich Null gesetzt, dieser Punkt entspricht dann der neuen *Wasserscheide*. Durch die bildliche Analogie einer geographischen Landschaft mit Wasservorkommen kann man sich das Verfahren sehr gut vorstellen. Die erhaltene Karte mit den Wasserscheiden wird dann lediglich noch zum ursprünglichen Binärbild addiert.

Auf diese Art und Weise erhält man ein segmentiertes Binärbild (siehe Abbildung 1.14). Sind die Objekte erst einmal voneinander getrennt, kann man mit wenig Aufwand die einzelnen Komponenten kennzeichnen (sogenanntes *labeln*) und vermessen. Die hier angewendete Bildverarbeitungssoftware, das auf Matlab aufset-

zende DIPimage, ist dabei in der Lage, standardmäßig solche Größen wie das Volumen, den geometrischen Schwerpunkt, die Oberfläche oder die Ausdehnung entlang der Koordinatenachsen zu ermitteln. Die Abfolge der Bildverarbeitungsschritte ist in Abbildung 1.14 zusammenfassend illustriert. Eine beispielhafte Auswertung eines porösen Materials mit den genannten Verfahren ist im Kapitel 2 zu finden.

2 Poröse Medien

Die Eigenschaften poröser Systeme werden vor allem durch die Charakteristik ihrer Poren (altgriechisch: *πόρος* „Loch“, „Öffnung“) bestimmt. In diesem Kapitel sollen Methoden zur Charakterisierung poröser Medien vorgestellt werden. Zusätzlich werden die spezifischen Eigenschaften von Kugelschüttungen vorgestellt, die für das Verständnis der Ergebnisse der Filtrationsexperimente notwendig sind.

Aufgrund der vielgestaltigen Ausprägung dieser Materialklasse findet man diese in vielen unterschiedlichen Forschungs- und Anwendungsgebieten. Auf dem Gebiet der Geophysik fußen viele Phänomene auf der durch das Leervolumen der Poren bedingten Speicherfähigkeit des Bodens für flüssige oder gasförmige Medien. So sind für die meisten Pflanzen die oberflächennahen Schichten des porösen *Bodens* in erster Linie ein Reservoir für Wasser und gelöste Nährstoffe. Durch den granularen Aufbau des Bodens ist es ihnen ferner überhaupt erst möglich, ihre Wurzeln fein innerhalb der Bodenschichten zu verteilen, um die Nährsalzlösung aufzunehmen [14]. Aber nicht nur Wasser ist im Boden gespeichert. An vielen Orten der Erde sind in porösen Sedimentgesteinen Erdgas oder Erdöl eingelagert. Dabei ist es häufig so, dass diese nicht am Ort der Lagerung entstanden sind, sondern aufgrund der Durchlässigkeit des porösen Sedimentgesteins erst vom sogenannten Muttergestein dorthin migriert sind.

Bei der Verbrennung fossiler, kohlenstoffhaltiger Brennstoffe wie Erdöl entstehen große Mengen CO_2 , die, wenn sie in die Atmosphäre gelangen, zum Treibhauseffekt beitragen. Eine relativ junge Forschungszweig beschäftigt sich daher damit, das bei der Energieerzeugung durch Verbrennung entstehende Gas von den restlichen Abgasen zu trennen und unterirdisch in geeigneten geologischen Formationen, wie beispielsweise salzwasserhaltigen porösen Sandsteinschichten, sogenannten salinen Aquiferen, einzulagern. Man spricht in diesem Zusammenhang von CO_2 -Abscheidung und -Speicherung (engl. Carbon Dioxide Capture and Storage, kurz CCS). Zusammenfassend ist für die bisher genannten Beispiele poröser Medien in erster Linie ihre Speicherfähigkeit ausschlaggebend. Sowohl Nährsalzlösungen, Rohöl als auch überkritisches CO_2 befinden sich jeweils *in* den Leerräumen, den Poren. Für andere Anwendungen kann es jedoch gerade wichtig sein, dass die Poren leer sind. Poröse Medien werden in diesem Fall sehr häufig zur Wärmeisolierung genutzt, denn das in den Poren enthaltene Gas - in der Regel Luft - ist im Vergleich zur Festkörpermatrix ein sehr schlechter Wärmeleiter. So kommen denn auch geschlossensorige Baustoffe wie beispielsweise Porenbeton als Wärmedäm-

mung im Wohnungsbau zum Einsatz.

Porenräume sind also wichtig für viele Anwendungen, aber gleiches gilt auch für die Grenzfläche von Pore und Festkörper - die Oberfläche. Poröse Materialien können nämlich in einem sehr kleinen Raumvolumen riesige Oberflächen realisieren. So entspricht beispielsweise die innere Oberfläche von 4 g Aktivkohle ungefähr der Fläche eines Fußballfeldes. Das bedeutet, dass für einen Würfel mit einer Kantenlänge von ca. 1 cm die innere Oberfläche rund 10.000 mal größer ist als die Würfeloberfläche. Solche hochporösen Materialien werden bevorzugt als Adsorptionsmittel zur Entfernung unerwünschter Farb-, Geschmacks- und Geruchsstoffe aus Gasen, Dämpfen und Flüssigkeiten eingesetzt. Bringt man auf die Oberfläche eines solchen Mediums ein Katalysatormaterial auf, können auf sehr kompaktem Raum große Reaktionsraten realisiert werden. Für die im Zentrum der vorliegenden Arbeit stehende Tiefenfiltration spielen sowohl die Poren, als auch die Oberfläche des Materials eine bedeutende Rolle. Bei der Tiefenfiltration werden kolloidale Partikel in ihrem flüssigen Trägermedium durch ein poröses Material transportiert und dabei an dessen Oberfläche abgeschieden. Die verschiedenen Aspekte der Tiefenfiltration werden ausführlich im Kapitel 3 dargestellt.

2.1 Charakterisierung poröser Materialien

Poröse Materialien besitzen eine große Bandbreite möglicher Geometrien, die zudem häufig eine unregelmäßige Struktur besitzen, so dass es schwierig ist, sie zu klassifizieren. Dennoch gibt es einige allgemeine Größen, die für alle Geometrien bestimmbar sind. Wichtig für eine Beschreibung der Geometrie ist dabei, dass das Material als ein binäres System aufgefasst wird, d.h. bestehend aus der Festkörpermatrix und den Porenräumen.

2.1.1 Porosität

Unter der Porosität ε - auch als Lückengrad bezeichnet - versteht man den Anteil des Porenvolumens V_P am Gesamtvolumen V , welches sich wiederum aus dem Porenvolumen V_P und dem reinen Festkörpervolumen V_F zusammensetzt [15]:

$$\varepsilon = \frac{V_P}{V} = \frac{V_P}{V_P + V_F} \quad (2.1)$$

Die Porosität kann demnach Werte im Intervall $[0, 1]$ annehmen. Für Sandböden, welche man als zufällige, dichte Packung massiver Kugeln auffassen kann, findet man Werte in der Größenordnung $\varepsilon \approx 0,35 \dots 0,45$. Aktivkohle, deren außergewöhnlich hohe innere Oberfläche bereits erwähnt wurde, weist Porositäten zwischen 0,6

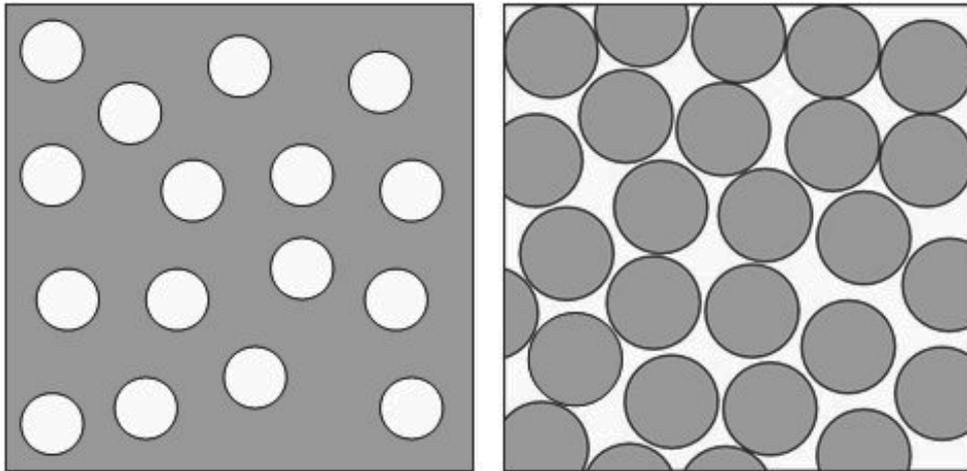


Abbildung 2.1: Vergleichbare Porositäten, völlig unterschiedliche Porensysteme: links ein geschlossenes, rechts ein offenes System (schematisch; Porenraum weiß dargestellt)

und 0,7 auf. Niedrige Werte findet man vor allem in Gesteinen; beispielsweise hat Schieferthon eine Porosität von unter 0,1.

2.1.2 Porosimetrie

Für die Messung von Porositäten kann man sich das archimedische Prinzip zunutze machen. Im Gedankenexperiment wird dabei der poröse Körper vollständig in eine Flüssigkeit bekannten Volumens getaucht. Die Flüssigkeit dringt dabei in die Poren ein, wodurch sich das Flüssigkeitsvolumen außerhalb des Körpers reduziert. Wenn man von einer inkompressiblen Flüssigkeit ausgeht, entspricht die Differenz zwischen den beiden Volumina dem Porenvolumen V_P . Bereits aus dem Gedankenexperiment ist somit unmittelbar einsichtig, dass ausschließlich diejenigen Poren experimentell mit einer solchen Methode erfasst werden können, die dem Immersionsmedium zugänglich sind. Existieren im Innern des porösen Medium isolierte, geschlossene Poren, so werden diese mit der Methode nicht erfasst. Daher kann man das Porenvolumen weiter konkretisieren; es besteht aus *offenen* Poren, die direkt oder über andere Poren mit der Atmosphäre in Kontakt stehen, und *geschlossenen* Poren (siehe Abbildung 2.1). Damit gilt:

$$\varepsilon = \frac{V_P}{V} = \frac{V_P^O + V_P^G}{V} \quad (2.2)$$

Die technische Umsetzung des obigen Gedankenexperiments ist die sogenannte Quecksilberporosimetrie [16]. Mithilfe dieser Methode kann man nicht nur die offene Porosität, sondern insbesondere die Verteilung der Porengrößen untersuchen.

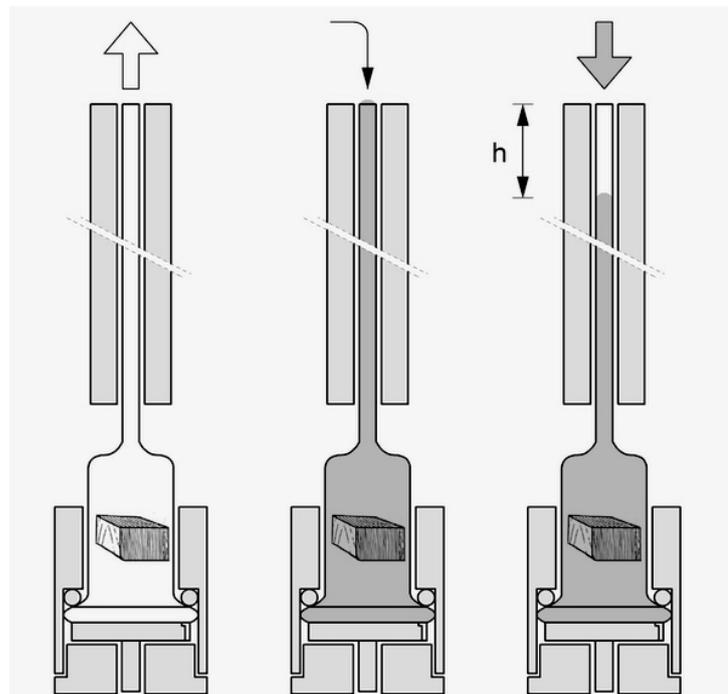


Abbildung 2.2: Funktionsweise eines Quecksilberporosimeters. Links: Evakuieren von Probenraum und Poren. Mitte: Füllen mit Quecksilber. Rechts: Inkrementelle Erhöhung des Drucks über der Flüssigkeit, dabei Messen des intrudierten Quecksilbervolumens. Nach [18].

In Abbildung 2.2 ist schematisch der Verlauf einer solchen Messung dargestellt: Zunächst wird das Probengefäß und das poröse Medium evakuiert, danach Quecksilber in das Gefäß eingebracht. Dadurch, dass Quecksilber ein sehr schlecht benetzendes Fluid ist - der Kontaktwinkel beträgt ca. 140° - dringt es unter Normaldruck bestenfalls in sehr große Poren ein. Daher bringt man über dem Flüssigkeitsspiegel zusätzlich einen Druck auf, der inkrementell erhöht wird. Gemessen wird die zum jeweiligen Druck gehörende Volumenänderung, mit der Tendenz, dass für stetig kleiner werdende Volumenänderungen immer höhere Drücke aufgebracht werden müssen. Aus dem Zusammenhang zwischen Volumenänderung und Druckänderung kann die Größe der Poren jedoch grundsätzlich nur mit Geometrieannahmen berechnet werden. Dies geschieht in der Regel mit der Annahme zylindrischer Poren, bei denen der Zusammenhang zwischen Druck p und Radius r durch die sogenannte *Washburn-Gleichung* [17] beschrieben wird:

$$r = -\frac{2\sigma}{p} \cos \theta \quad (2.3)$$

Dabei ist σ die Oberflächenspannung des Fluids und θ der Kontaktwinkel, den das Fluid auf dem betrachteten Material bildet. Letztgenannte Größe wird häufig nur

geschätzt, bzw. wird für alle untersuchten Materialien derselbe Wert verwendet.

Das gravierendste Problem der Methode ist jedoch die a priori vorausgesetzte Zylindergeometrie der Poren, die häufig überhaupt nichts mit dem tatsächlichen Befund zu tun hat. Die stark vereinfachende Strukturbeschreibung ist dabei ein generelles Problem in der Theorie poröser Medien. Was liegt daher näher, als die poröse Struktur *direkt* abzubilden und die Ergebnisse als Eingangsinformation für Simulationen oder zur Parameterextraktion zu verwenden?

2.1.3 Tomographische Charakterisierung poröser Medien

Poröse Systeme werden heute sehr häufig mit Hilfe von Röntgentomographie charakterisiert [19, 20]. In diesem Abschnitt sollen dazu exemplarische Ergebnisse zur Charakterisierung poröser Medien auf Grundlage röntgentomographischer Daten vorgestellt werden. Bei der untersuchten Keramik handelt es sich um eine sogenannte *freeze cast*-Keramik, bestehend aus Al_2O_3/SiO_2 . Bei dieser Keramikart wird die verformbare Vorstufe der Keramik, der Grünkörper, entlang einer propagierenden Einfrierfront eingefroren. Das besondere ist, dass die Keramik durch einen *Sol-Gel-Prozess* [21] ihre Struktur und Festigkeit erhält, und das traditionelle Kennzeichen der Keramikherstellung, nämlich ein Hochtemperatur-Sintervorgang, entfällt. Dieser wird quasi durch die Tieftemperaturbehandlung, während derer die enthaltenen Silikate einen Sol-Gel-Übergang zeigen, ersetzt. Nach Sublimation des Eises erhält man die fertige Keramik.

In Abbildung 2.3 ist die untersuchte Probe dargestellt. Der Verlauf der Einfrierfront ist durch den weißen Pfeil gekennzeichnet. Untersucht wurden die durch einen Rahmen markierten Probenbereiche. Sie unterscheiden sich demnach in erster Linie durch den Zeitpunkt des Einfrierens, d.h. Probenbereich A befindet sich länger im flüssigen Zustand als B, der schon eher erstarrt. Die Keramik zeigt Poren von annähernd sphärischer Gestalt. Die Poren entstehen, indem der Schlicker, die Mischung aller Komponenten der Keramik, mechanisch aufgerührt wird. Die Vermutung ist nun, dass die eingebrachten Luftblasen sich im Grünkörper noch in geringem Maße bewegen bzw. koaleszieren können, während in der gefrorenen Phase keine Bewegung mehr möglich sein sollte. Daher wurde die finale Porengrößenverteilung in zwei Zonen der Keramik mit röntgentomographischen Methoden untersucht.

Zu diesem Zwecke wurden am Hamburger Synchrotronlabor zwei Röntgenabsorptionstomogramme der porösen Probe aufgenommen: Tomogramm A in einem Bereich, der später eingefroren wurde als Bereich B, von dem ebenfalls ein Tomogramm angefertigt wurde. Die Photonenenergie betrug 20 keV, die Vergrößerung

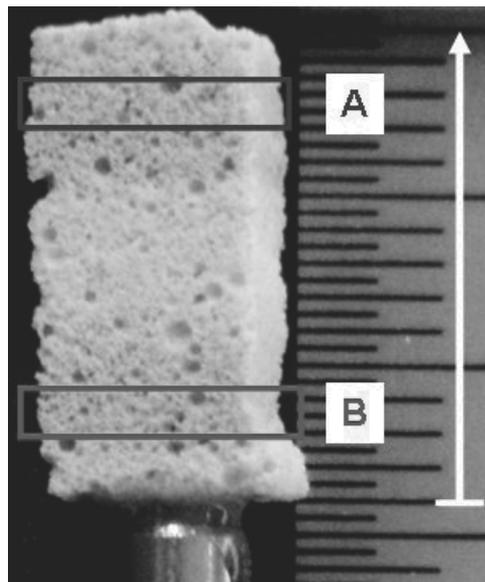


Abbildung 2.3: Photographie der Keramikprobe mit gekennzeichneten Bereichen, von denen Tomogramme angefertigt wurden.

wurde auf $M=3,4$ eingestellt. Wie bereits im Abschnitt 1.2.2 erläutert, sind einige Bildverarbeitungsschritte nötig, um aus den Bilddaten des Tomogramms quantitative Daten über die Struktur der Keramik zu erhalten. Im genannten Abschnitt wurde das prinzipielle Vorgehen anhand von zweidimensionalen Schnittbildern erläutert; diese Vorgehensweise kann man analog auf drei Dimensionen erweitern. Die Konsequenz ist allerdings, dass - insbesondere bei Bilddaten mit hoher Pixelanzahl - die Ansprüche an den Arbeitsspeicher des verwendeten Rechners und auch die Rechenzeit, die zur Auswertung benötigt wird, steigen. Für die betrachtete Keramik wurde eine solche 3D-Analyse der Porengrößen jeweils separat für die zwei aufgenommenen Tomogramme mit Hilfe des auf Matlab aufsetzenden Programms DipImage durchgeführt. Der Bildstapel wurde zunächst eingelesen und mit einem Medianfilter geglättet. Danach erfolgte die Segmentierung mittels des Schwellwertverfahrens nach Huang [22]. Als letztes wurden die segmentierten Bereiche nummeriert und deren Volumen bestimmt. Die Parameter der Bildverarbeitung sind für die beiden Tomogramme identisch (vgl. Tabelle 2.1), so dass der Vergleich der Ergebnisse beider Probenbereiche unter identischen Voraussetzungen erfolgt.

Zunächst ist festzuhalten, dass die beiden Bereiche der Probe eine nahezu identische Porosität aufweisen ($p_A = 55,9 \%$, $p_B = 58,0 \%$). Aus den Volumina der mittels Bildverarbeitung identifizierten Poren wurde ein Äquivalentdurchmesser errechnet, indem man davon ausgeht, dass die Porenräume kugelförmig sind. Die ermittelte Häufigkeitsverteilung des Äquivalentdurchmessers der Poren ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass die ermittelten Äquivalentdurchmesser in

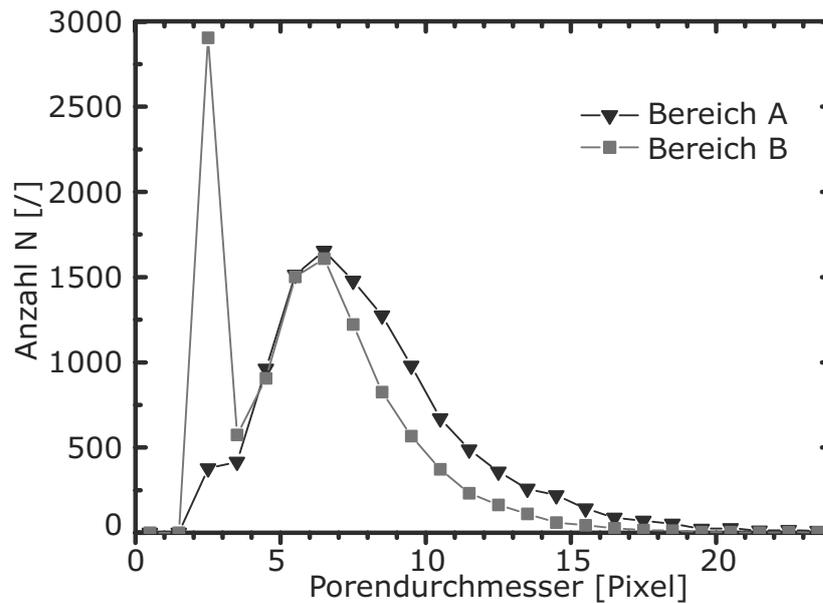


Abbildung 2.4: Porengrößenverteilung einer porösen Keramik

Klassen von jeweils einem Pixel Breite eingeteilt wurden. Zu beobachten sind lokale Häufigkeitsmaxima des Durchmessers bei 6,5 Pixeln. Daneben zeigt Bereich B ein weiteres, noch stärker ausgeprägtes Maximum bei 2,5 Pixeln, das bei Bereich A lediglich durch eine Schulter am Hauptpeak zutage tritt. Desweiteren stellt man fest, dass die Anzahl großer Poren (Äquivalentdurchmesser > 7 Pixel) im Bereich A größer ist als im Bereich B. Aus der sehr ähnliche Gesamtporosität der beiden Probenbereiche könnte man folgern, dass das Gasvolumen im Schlicker insgesamt erhalten bleibt, jedoch ein Wachstumsprozess bei der Größe der Poren stattfindet. Es ist mit den gemessenen Porengrößen vereinbar, anzunehmen, dass die großen Poren wachsen, weil diese mit kleineren Poren (Äquivalentdurchmesser < 4 Pixel) koaleszieren. Dadurch dass der Schlicker im Probenbereich A länger deformierbar bleibt, weil er erst später eingefroren wird, kann dieser Wachstumsprozess länger wirken als im Bereich B.

Schwelwmethode	Huang [22]
Medianfilter	Radius = 1 <i>Pixel</i>
Konnektivität	6

Tabelle 2.1: Parameter der Bildverarbeitung der Tomogramme einer porösen Keramik.

2.2 Kugelschüttungen

Kugelschüttungen werden aufgrund ihres relativ einfachen Aufbaus oft als Modellsystem für poröse Medien betrachtet. Im Allgemeinen handelt es sich dabei um ein durch Schütten generiertes Ensemble gleichgroßer Kugeln. Die Komponenten der Schüttung sind damit wohldefiniert, nicht jedoch die konkrete Geometrie der Packung, die daher als zufällig bezeichnet wird. Dies beinhaltet, dass die Packung nicht durch ein n -Tupel linear unabhängiger Vektoren beschrieben werden, denn in ihr existiert keine langreichweitige Ordnung. Darin unterscheidet sie sich von einer geordneten Packung bzw. einem (Kristall-) Gitter, die jeweils eine periodische Ordnung besitzen.

2.2.1 Mittlere Porosität

Eine zufällige Packung wird daher statistisch, durch die Angabe mittlerer Parameter, beschrieben. Dabei muss man berücksichtigen, dass es eine beträchtliche Variationsbreite bei der Herstellung solcher Schüttungen gibt, da durch Rütteln der Packung eine nachträgliche Verdichtung und Geometrieänderung erfolgen kann. Die mittleren Parameter unterliegen daher immer einer gewissen Schwankung [23]. In Tabelle 2.2 sind die Porositäten und Koordinationszahlen unterschiedlicher geordneter Kugelpackungen sowie zum Vergleich der Variationsbereich dieser Parameter von zufälligen Kugelschüttungen aufgelistet. Die Porosität von Kugelschüttungen wird analog zu Definition 2.1 ermittelt. Im strengen Sinne müsste man dabei eine unendlich ausgedehnte Packung betrachten, da lokale Schwankungen der Porosität in endlichen Systemen nur durch entsprechend großräumiges Integrieren ausgeglichen werden können. In der Praxis benutzt man das sogenannte *Repräsentative Volumenelement (REV)*, innerhalb dessen die lokale Porosität ermittelt wird. Dieses Volumen sollte dabei deutlich größer als ein typischer Porenraum, jedoch kleiner als das Gesamtsystem sein.

Die dichteste Art, gleichgroße Kugeln zu packen, ist die Anordnung hexagonaler Kugel-Ebenen, in denen eine (Zentrums-) Kugel von 6 benachbarten Kugeln umgeben ist. Dies wurde bereits 1611 von Johannes Kepler postuliert; es handelt sich um die berühmte Keplersche Vermutung. Deren äußerst umfangreicher und komplizierter Beweis wurde jedoch erst 1998 von Thomas Hales erbracht [24]. Dichtere Packungen als die hexagonal dichte Packung erfordern eine von der Kugel abweichende Geometrie der Einzelkörper. Neuere Ergebnisse aus der Literatur zeigen, dass Tetraeder - also Körper, die von 4 gleichseitigen Dreiecken begrenzt werden - im ungeordneten Packungszustand eine Packungsdichte ε von 0,22 bis 0,24 errei-

Bezeichnung		Porosität ϵ	Koordinationszahl
kubisch primitiv	SC	0,4764	6
kubisch raumzentriert	BCC	0,3198	8
kubisch flächenzentriert	FCC	0,2592	12
hexagonal dichteste Packung	HCP	0,2592	12
zufällige Packungen		0,37±0,008	7...8(Häufigk.max.)

Tabelle 2.2: Porosität und Koordinationszahl verschiedener Kugelpackungen

chen [25]. Überraschend ist dies insofern, als dass bisherige Bestrebungen, dichte Packungen zu erzeugen, häufig mit Variationen kugelähnlicher Objekte (Ellipsoide) unternommen wurden. Die Geometrie des Tetraeders steht in diesem Zusammenhang für ein völlig neuartiges Konzept zur Reduzierung der Packungsdichte.

2.2.2 Lokale Ordnung

Auch wenn langreichweitige Korrelationen fehlen, sind zufällige Schüttungen nicht regellos und chaotisch. Tatsächlich lassen sich eine Reihe lokaler Ordnungen beschreiben, die für die Interpretation von Resultaten dieser Arbeit wichtig sind. Hier sind vor allem Wandeinflüsse maßgeblich. Diese haben vor allem Porositätsschwankungen und damit einhergehend eine Änderung der Kontaktwinkelverteilung zur Folge.

2.2.3 Porosität räumlich begrenzter Schüttungen

Eine unverschiebliche, für die Kugeln undurchdringliche begrenzende Wand hat einen ordnenden Einfluss auf die Kugelpackung, vergleiche Abbildung 2.5. Randkugeln sind in ihrer Anordnung beschränkt; durch ihren Berührungspunkt mit der Wand verhalten sie sich analog zu dichtgepackten Kugeln auf einer ebenen Fläche. Das Ergebnis ist, dass wandberührende Kugeln eine Tendenz zeigen, sich zu hexagonalen Strukturen zusammen zu lagern. Durch die Einschränkungen in der Positionierung wandnaher Kugeln kommt es ferner zu ausgeprägten Oszillationen der mittleren Porosität in Abhängigkeit vom Wandabstand (siehe Abbildung 2.6 und z.B. [26] [27] [28]). Die erste Kugellage, die sich in direktem Kontakt mit der Wand befindet, sorgt dafür, dass die lokale Porosität am Rand nahezu 1 ist (siehe Abbildung 2.6). Entfernt man sich weiter vom Rand, sinkt diese, weil man sich auf den Mittelpunkt der ersten Kugellage zu bewegt. Ist der Mittelpunkt der ersten Kugellage überschritten, steigt die Porosität wieder an. Dies setzt sich nun so fort,

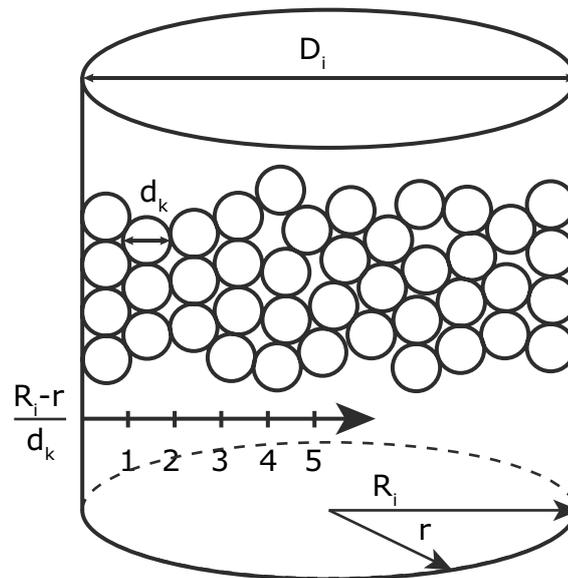


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung einer Kugelschüttung im Zylinder. Eingezeichnet sind Zylinderdurchmesser, Kugeldurchmesser sowie der bezogene Wandabstand.

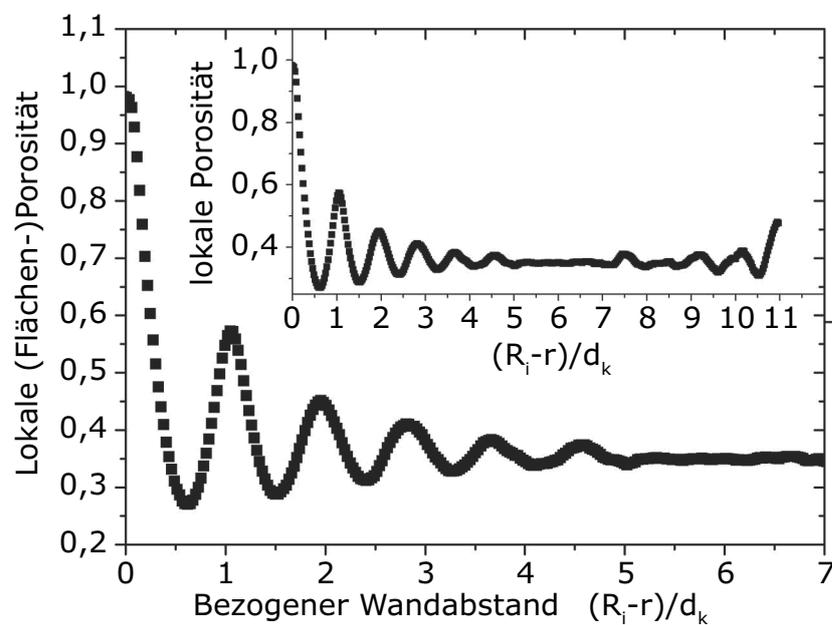


Abbildung 2.6: Verlauf der lokalen Porosität als Funktion des bezogenen Wandabstandes der in Kapitel 5 vorgestellten Kugelschüttung. In Wandnähe kommt es zu starken Schwankungen der lokalen Porosität des Filterbettes. Erläuterungen im Text.

wobei sich die Amplitude der Oszillation mit steigendem Abstand von der Wand abschwächt. Der Spielraum bei der Positionierung wandferner Kugeln wird größer, was wiederum zur Abschwächung der wandinduzierten Ordnung führt. Entfernt man sich hinreichend weit von der Wand - im hier betrachteten Experiment etwa 5 Kugellagen - so nähert sich die schwankende lokale Porosität einem mittleren Wert von 0,36. Dies ist annähernd im Einklang mit dem Erwartungswert für eine zufällige Kugelschüttung (siehe Tabelle 2.2). Einerseits sinkt also die Amplitude der Porositätsschwankung für zunehmenden Wandabstand, andererseits verschiebt sich auch die Lage der Maxima und Minima. Während in der ersten Kugellage das Porositätsminimum noch exakt beim Radius der Kugel auftritt, gibt es bei entfernteren Kugeln schon die Möglichkeit von Einrückungen der zweiten Kugellage in die erste. Dadurch werden die Abstände der Minima und Maxima kleiner als ein Kugelradius.

In zylindrischer Geometrie werden Porositäts-Oszillationen in der Nähe von allen begrenzenden Flächen beobachtet: einerseits in der Nähe von Boden und Deckel des Zylinders, andererseits nahe der Mantelfläche. Will man den Einfluss dieser Grenzflächen auf die lokale Porosität studieren, muss man über hinreichend große Bereiche *gleichen Wandabstands* integrieren. Im Fall von Boden und Deckel integriert man also auf einer Kreisfläche, die parallel zur Wandfläche ist. Im Fall der Mantelfläche integriert man die Porosität auf der Mantelfläche eines Zylinders, der einen Radius r besitzt, der kleiner als der der Schüttung (R) ist, aber die gleiche Mittelachse wie diese besitzt. Um die Ergebnisse vergleichbar mit anderen Arbeiten zu machen, wird häufig die Porosität über dem bezogenen Wandabstand aufgetragen. Bezogen bedeutet in diesem Zusammenhang, dass der Abstand in Einheiten des mittleren Kugeldurchmessers der Packung angegeben wird. Diese Darstellungsart wird auf dem Gebiet der Kugelschüttungen häufig verwendet. Die Problematik, dass für Angaben der lokalen Porosität das Integrationsgebiet hinreichend groß sein muss, ist auch aus den hier vorgestellten Daten abzulesen. Im eingerückten Teil der Abbildung 2.6 ist der vollständige Datensatz der lokalen Porosität zu sehen, d.h. die nach obigen Erläuterungen ermittelte lokale Porosität für den gesamten Radius der Packung. Die Kugelschüttung hat insgesamt einen Durchmesser von etwa 22 Kugeldurchmessern. Man stellt fest, dass die sich bei einem Wandabstand von ca. 5 Kugeldurchmessern einstellende konstante lokale Porosität nur bis ca. 7 Kugeldurchmesser erhalten bleibt. Für Packungsradien größer als 7 Kugeldurchmesser beginnt erneut eine Oszillation der lokalen Porosität, die jedoch in diesem Fall nicht auf lokale Ordnung, sondern lediglich auf einen nicht ausreichend großen Mittlungsbereich hinweist.

2.2.4 Kontaktwinkelverteilung

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, dass die lokale Porosität von lokalen Ordnungsphänomenen beeinflusst wird. An den Randbereichen einer Schüttung ändert sich jedoch nicht nur die Dichte der Kugeln, auch die Art und Weise, wie sie relativ zueinander gepackt sind, verändert sich. Ein geeigneter Parameter zur Beschreibung dieser Relativposition ist der Kontaktwinkel zweier Kugeln. Dieser gibt an, unter welchem Winkel relativ zur Symmetrieachse des zylindrischen Packungsbehälters zwei Kugeln einander berühren. Dabei ist maßgeblich, welchen Winkel die Strecke zwischen den Mittelpunkten der Kugeln und die Symmetrieachse des Zylinders einschließen (siehe Abbildung 2.7). In einer Veröffentlichung von Reimann [29] wurde eine zufällige Packung von Kugeln tomographisch untersucht und die Winkelverteilung der Kugel-Kugel-Kontakte ermittelt (siehe Abbildung 2.8). Es wird hier zwischen Kugeln der ersten bis vierten Lage, sowie der *bulk zone* - also der Mitte der Packung - unterschieden. Man erkennt, dass sich die Winkelverteilung der Kontakte mit der Position der Kugeln in der Packung deutlich ändert. In der ersten Lage sieht man, wie man es ausgehend von Skizze 2.7 auch erwartet, ein deutliches Maximum bei $\delta = 180^\circ$, dem Berührungspunkt der Kugel mit dem Boden des Zylinders. Bei $\delta = 90^\circ$ tritt ein noch ausgeprägteres Maximum auf, denn hier berühren sich Kugeln, die nebeneinander auf der Bodenplatte des Zylinders liegen. Ein weiteres Maximum kann bei $\delta = 40^\circ$ beobachtet werden. Dies entspricht im Wesentlichen der Winkelverteilung einer hexagonalen Packung ($\delta = 37^\circ$ sowie $\delta = 90^\circ$), jedoch nicht in der Häufigkeit der genannten Winkel, da keine ideale hexagonale Struktur vorliegt. Mit zunehmendem Wandabstand, d.h. von der zweiten bis zur vierten Kugellage, nimmt die Ausprägung dieser Maxima ab, bis im bulk-Zustand eine cosinusartige Verteilung der Kontaktwinkel beobachtet wird. Dies entspricht der Gleichverteilung der Kontakte auf die an einer Kugel verfügbaren Winkelpositionen.

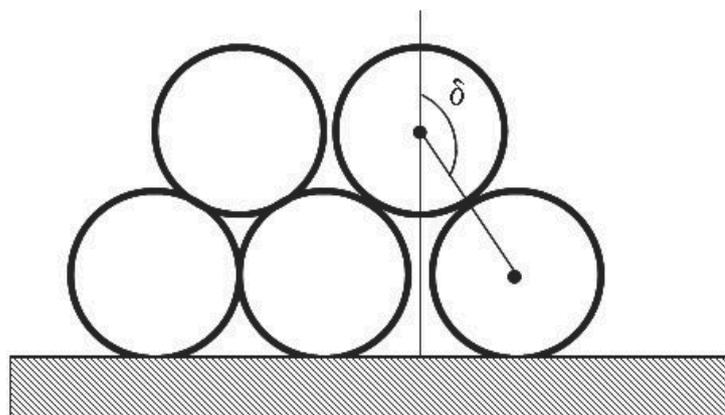


Abbildung 2.7: Ermittlung des Kugel-Kugel-Kontaktwinkels.

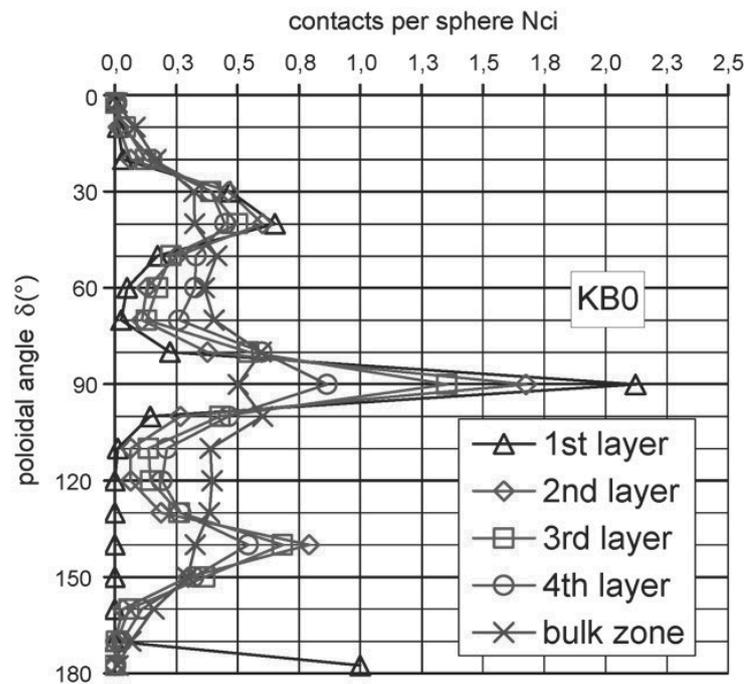


Abbildung 2.8: Verteilung der Kugel-Kugel-Kontaktwinkel für verschiedene Kugellagen in einer zufälligen Schüttung mit Wandeinfluss. Aus [29].

Um an einer Kugelpackung die lokalen Ordnungsphänomene von den Eigenschaften der bulk-Packung unterscheiden zu können, muss sie geeignet dimensioniert sein. Bei Kugelschüttungen zieht man zu diesem Zweck häufig das Verhältnis zwischen dem Durchmesser d_K der Kugeln und dem Innendurchmesser D_i der (zylindrischen) Behälterwand heran. Betrachtet man die Längenskalen, auf denen charakteristische Änderungen lokaler Ordnungen stattfinden, kommt man zu dem Schluss, dass ein $\frac{D_i}{d_K}$ -Verhältnis von etwa 20 die gleichzeitige Beobachtung von bulk- und Randeffekten ermöglicht.

3 Tiefenfiltration

Ein Prozess, bei dem ein Fluid-Feststoff-Gemisch mit Hilfe eines für das Fluid durchlässigen Filtermittels in seine Bestandteile zerlegt wird, heißt Filtration. Filtrationsprozesse findet man nicht nur in Laboren, sondern auch im großen Maßstab in der chemischen und pharmazeutischen Industrie, genauso wie bei der Lebensmittelherstellung. Daneben finden sich diese Prozesse in der heimischen Küche, z.B. beim Kaffekochen. Eine der für den Menschen wichtigsten Anwendungen ist jedoch die Aufbereitung von Trinkwasser, welche im natürlichen Wasserkreislauf in den porösen Schichten des Bodens stattfindet und im technischen Maßstab in ganz ähnlichen Schüttbetten stattfindet. Dabei werden je nach Aufgabenstellung verschiedene Filterverfahren angewandt [30–32].

3.1 Filterverfahren und deren Anwendung

Filtrationsprozesse verfolgen das Ziel, die dem Filter zugeführte *Trübe* bzw. *Suspension* mit Hilfe eines Filtermittels in eine Feststoffphase und das geklärte *Filtrat* zu zerlegen. Dies kann mit zwei unterschiedlichen Filtrationsprinzipien erreicht werden, der *Tiefenfiltration* und der *Oberflächenfiltration* (siehe Abbildung 3.1). Tiefen- und Oberflächenfiltration stellen dabei stark idealisierte, vereinfachte Modelle dar. In der Praxis ist es vielfach so, dass beide Prozesse gleichzeitig auftreten; man benennt die Filtration dann nach dem dominierenden Prozess.

3.1.1 Oberflächenfiltration

Bei der Oberflächenfiltration basiert die Filterwirkung darauf, dass alle Feststoffpartikel größer sind als der minimale Porendurchmesser des Filters. Der Partikelrückhalt findet also aus Geometrie Gründen statt, man spricht vom Sperreffekt. Weil die Ausdehnung der Partikel an einem Punkt ihrer Trajektorie den verfügbaren freien Querschnitt der fluiden Phase überschreitet, können sie der Flüssigkeit nicht folgen und bilden eine zunehmend dickere Schicht auf dem in der Regel zweidimensionalen, d.h. flächigen, Filter. Man spricht in diesem Zusammenhang von *Sieb Wirkung*, und ganz wie bei einem Sieb ist es die sich zunehmend ansammelnde Feststoffphase, der Filterkuchen, die den Prozess limitiert. Der anwachsende Filterkuchen verursacht einen zunehmenden Druckanstieg (siehe Abbildung 3.2), der den Energieaufwand, weitere Suspension zu filtrieren, sukzessive erhöht.

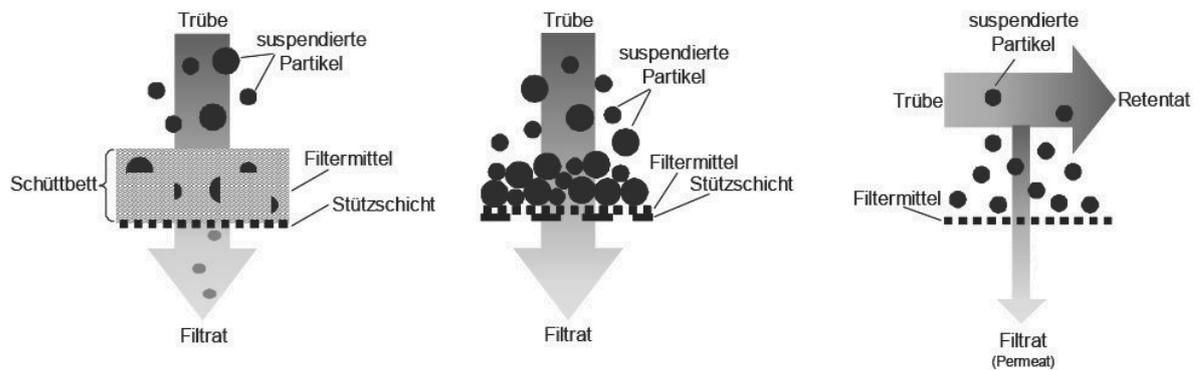


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Tiefen-, Oberflächen- und Querstromfiltration (von links nach rechts). Aus [33].

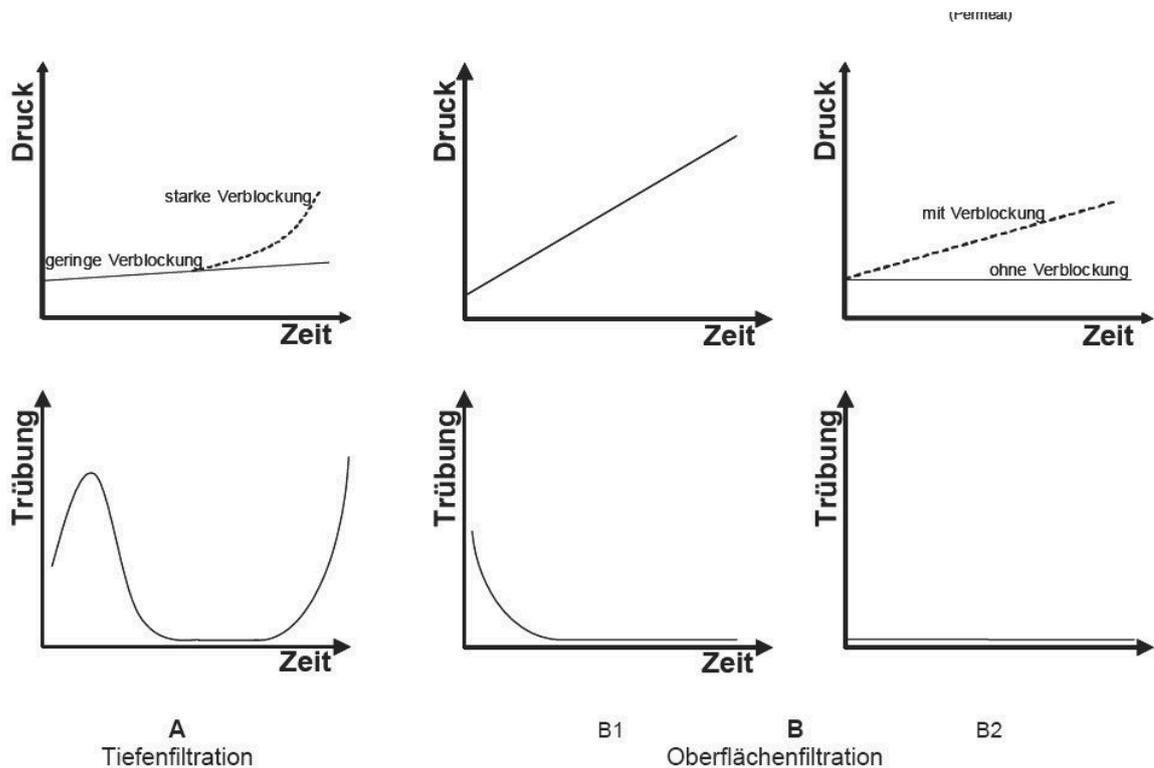


Abbildung 3.2: Verhalten von Druck (obere Reihe) und Partikelkonzentration des Filtrats (untere Reihe) für Tiefen-, Oberflächen- und Querstromfiltration (von links nach rechts). Aus [33].

Daher muss bei dieser Art Filter die Feststoffphase regelmäßig entfernt werden. Diesen Arbeitsschritt versucht man in der *dynamischen* Oberflächenfiltration oder *Querstromfiltration* zu vermeiden bzw. herauszuzögern, indem man das Filtrat nicht senkrecht zum Filter strömen lässt, sondern parallel dazu. Dadurch wird der Filterkuchen quasi instantan wieder abgetragen, bzw. es kommt gar nicht erst zum Aufbau eines solchen, so dass der Druckverlust während des Prozesses konstant ist. Das Filtrat läuft dabei senkrecht zum Filter nach außen, und die aufkonzentrierte Trübe wird in Längsrichtung abtransportiert. Beide Varianten der Oberflächenfiltration werden vorrangig für Suspensionen mit hohen Partikelkonzentrationen eingesetzt oder in Fällen, in denen vollständiger Rückhalt gefordert ist, wie z.B. bei der Sterilfiltration.

3.1.2 Tiefenfiltration

Die Tiefenfiltration unterscheidet sich in ihren Mechanismen grundsätzlich von der Oberflächenfiltration. Wie der Name nahelegt, werden hier die Partikel im Inneren des Filters abgeschieden. Dazu ist es notwendig, dass der Partikeldurchmesser kleiner als die Poren des Filters ist:

$$d_{\text{Partikel}} \leq d_{\text{Pore}} \quad (3.1)$$

Ungeeignet sind Suspensionen mit großen Partikeln auch deshalb, weil diese die ersten Schichten des Filters schon nach kurzer Zeit blockieren und damit den Druckverlust steigern. Damit die Partikel im Filter verbleiben, müssen sie *adsorbiert* werden, also mit chemischen oder physikalischen Mechanismen an die Oberfläche im Inneren des Filters gebunden werden. Weil die zur Verfügung stehende Oberfläche begrenzt ist und der Weg dorthin passierbar bleiben muss, kommen für die Tiefenfiltration nur Suspensionen mit sehr geringer Partikelkonzentrationen infrage. Typischerweise beträgt diese 500 ppm oder weniger. Nach einer gewissen Zeit erreicht der Tiefenfilter jedoch auch bei geringen Konzentrationen seine Beladungsgrenze. Dass äußert sich dadurch, dass das Filtrat nicht mehr klar ist, sondern eine signifikante Partikelkonzentration enthält. Diesen Vorgang nennt man *Filterdurchbruch*, er stellt das zuletzt greifende Abbruchkriterium eines Filtrationsvorgangs dar. Durch Beobachtung des Volumenstroms (bei konstantem Druck) können jedoch Blockierungen rechtzeitig erfasst werden, und so der Prozess gestoppt und eine Kontamination des Filtrats verhindert werden. In der Regel muss der Filterkörper dann entsorgt oder sofern möglich rückgespült, also eine Zeitlang in Gegenrichtung betrieben werden.

In der Praxis stellen *granulare, poröse Medien* die am häufigsten auftretende Klasse der Tiefenfilter dar. Vor allem in einem der Hauptanwendungsgebiete der Tiefenfiltration, der Aufbereitung von Trink- und Brauchwasser, werden granulare Schüttbetten eingesetzt. Diese bestehen in der Regel aus natürlich vorkommenden granularem Material wie beispielsweise Kies, dessen Durchmesser- und Verteilung jeweils an die Filtrationsaufgabe angepasst wird. Auch eine schichtweise Kombination granularer Materialien verschiedenen Durchmessers wird in vielen Filtern angewandt.

3.2 Theoretische Beschreibung der Tiefenfiltration

Die theoretische Beschreibung der Vorgänge in einem Tiefenfilter ist weit fortgeschritten (siehe Übersichtsartikel [34]). Dennoch ist man immer noch davon entfernt, die dabei stattfindenden komplexen interagierenden Prozesse von Strömung, Partikeltransport und Abscheidung auf lokaler Ebene zu verstehen. Von einem solchen Verständnis lokaler Phänomene erhofft man sich Verbesserungen bei der Vorhersagbarkeit des Filtrationsergebnisses und somit ein tieferes Verständnis über das insgesamt Verhalten des Filters. Die Abscheidung von Kolloiden in einem Tiefenfilter wird aktuell vornehmlich mit der sogenannten Kolloid-Filtrations-Theorie (engl.: colloid filtration theory, CFT) beschrieben [35] [36] [37], auf die im Folgenden näher eingegangen werden soll. Sie unterscheidet zwei im Wesentlichen voneinander unabhängige Prozesse: den *Antransport* von Partikeln aus dem Fluid auf die Oberfläche eines Filters und die *Abscheidung* dieser Partikel auf der Oberfläche.

3.2.1 Antransportmechanismen

Die Beschreibung des Antransports von Partikeln mit der Strömung in Richtung Oberfläche ist der erste Schritt, um die Abscheidung von Partikeln aus einer Suspension im Filterkörper zu modellieren. Dabei werden die folgenden Antransportmechanismen unterschieden (vgl. Abbildung 3.3):

- Diffusion
- Trägheit
- Sedimentation
- hydrodynamische Effekte
- Interception
- Wedging

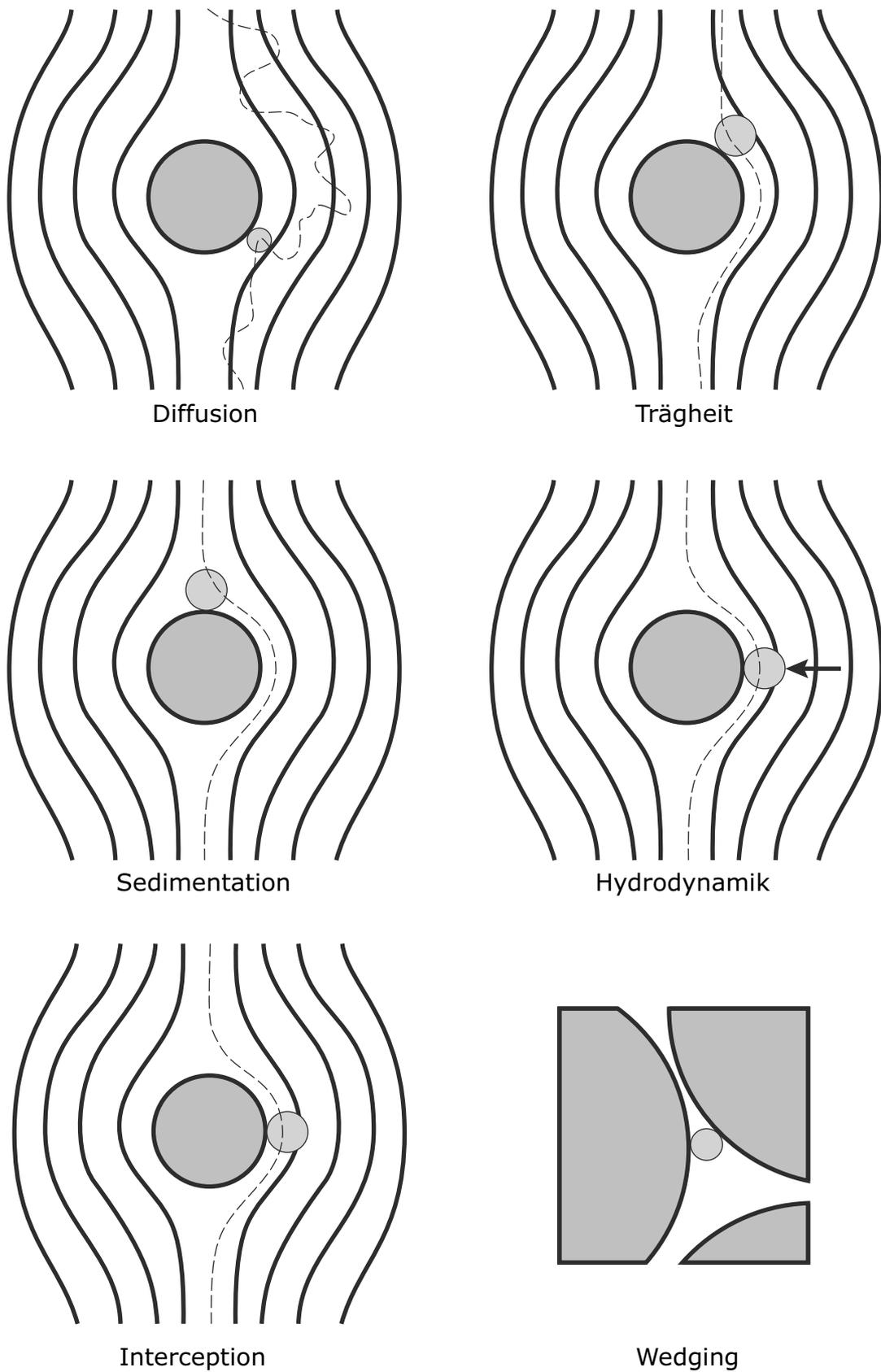


Abbildung 3.3: Die verschiedenen Antransportmechanismen bei der Tiefenfiltration.
Aus [33].

Im folgenden sollen die einzelnen Antransportmechanismen näher vorgestellt werden. Die Brownsche Molekularbewegung lässt sehr kleine Partikel (Kolloide, $d_p \approx 1 \text{ nm} \dots 10 \text{ } \mu\text{m}$) in einem Fluid eine zufällige, ruckartige Bewegung ausführen. Sie stammt von der thermischen Bewegung der Fluidmoleküle, mit denen die Kolloide zusammenstoßen. Diese Bewegung ist nicht gerichtet, das heißt es gibt keine effektiven makroskopischen Transport der Teilchen. Allerdings wird das Kolloid während einer bestimmten Zeit im Mittel eine von der Temperatur abhängige Bewegung ausführen, und deren mittlere quadratische Verschiebung $\langle \sigma^2 \rangle$, ein Maß für den 'Radius' innerhalb dessen diese Bewegung stattfindet, kann wie folgt berechnet werden:

$$\langle \sigma^2 \rangle = \frac{4k_B T}{6\pi r \eta} t \quad (3.2)$$

Dabei ist k_B die Boltzmann-Konstante, T die absolute Temperatur in Kelvin, r der Radius des Kolloids, η die dynamische Viskosität des Fluides und t eine charakteristische Zeit, die für die Durchquerung eines typischen Porenraumes benötigt wird. Durch die Brownsche Bewegung ist es also statistisch möglich, dass Partikel in Richtung Oberfläche gelangen.

Darüberhinaus kann ein Partikel unter dem Einfluss von *Trägheitskräften* oder *Gravitationskräften* (Sedimentation) auch weiter entfernte Stromlinien verlassen und sich in Richtung der Filteroberfläche bewegen. Dies ist der Fall, wenn die Dichte der Partikel wesentlich größer ist als die des Fluides. Bei der Sedimentation findet der Transport dabei stets parallel zur Richtung der Gravitation statt; auf Sedimentation zurück zu führende Partikelanlagerungen können also nur an den nach oben gerichteten Oberflächen eines Filterkorns zu finden sein. Trägheitseffekte bewirken, dass ein Partikel einer abrupten Richtungsänderung der Strömung, beispielsweise beim Auftreffen auf eine Kugeloberfläche, nicht folgen kann und tangential zur gekrümmten Stromlinie seine Bahn fortsetzt. Dabei kann es zu einem Antransport an die Oberfläche des Filterkorns kommen.

Unter dem Begriff *Hydrodynamische Effekte* fasst man alle Antransportmechanismen zusammen, die durch die konkrete Gestalt des Strömungsfeldes entweder eine Kraftwirkung auf die Partikel ausüben oder für erhöhte Verweilzeiten der Partikel in Oberflächennähe sorgen [38]. Bei einem laminaren Fluss beispielsweise entsteht im Querschnitt einer Pore ein Geschwindigkeitsgradient, wobei die Geschwindigkeit an der Filteroberfläche Null und in der Mitte der Pore maximal ist. Befindet sich nun ein ausgedehnter Partikel in diesem Feld, so entsteht durch den Geschwindigkeitsgradienten eine resultierende Kraft auf das ausgedehnte Partikel, woraufhin es zu rotieren beginnt. Bei dieser Rotation des Partikels im Scherfeld kommt es zu Querkräften,

die zur Filteroberfläche hin gerichtet sind [35].

Die Partikel einer Suspension bewegen sich auf Trajektorien durch den Filter, die im Fall idealer Dichteanpassung mit den Stromlinien zusammenfallen. Partikel auf Stromlinien, die nahe an einer Filteroberfläche vorbeiführen, können dann aufgrund ihrer räumlichen Ausdehnung mit dieser in Kontakt kommen. Das plötzliche Abbremsen der Partikel wird durch die Oberflächenrauigkeit der Filterkörner unterstützt. Dieser Mechanismus wird auch im deutschen Sprachraum als *Interception* bezeichnet, was man in diesem Zusammenhang als *einfangen* übersetzen könnte.

Der letzte, erst vor kurzem in der Literatur erwähnte Antransportmechanismus ist das sogenannte *Wedging*, bei dem ein Partikel in der Nähe von Kugel-Kugel-Kontaktpunkten zwischen den Oberflächen benachbarter Filterkörner festgeklemmt wird (engl. wedge = Keil). Da es sich um einen neuartigen Antransportmechanismus handelt, ist die Nomenklatur in der Literatur dafür nicht einheitlich. Bisweilen wird *Wedging* als Spezialfall des Sperreffekts (Straining) verstanden, obwohl die betrachteten Partikel kleiner sind als ein typischer Porenraum und daher kein Siebeffekt auftreten kann. Auch die Ähnlichkeit mit dem Mechanismus der *Interception* führt in der Literatur zu unklaren Bezeichnungen, wobei jedoch im Gegensatz zur *Interception* beim *Wedging* die Anlagerung auf Gebiete in der Nähe von Kontaktpunkten beschränkt ist.

3.2.2 Abscheidungsmechanismen

Die verschiedenen Antransportmechanismen bewirken, dass ein Partikel nah genug an die Oberfläche gebracht wird, um dort potentiell physikalischen Kräften ausgesetzt zu sein, unter deren Wirkung es an der Filteroberfläche verbleibt und damit aus der Suspension *abgeschieden* wird. Da es sich dabei ausschließlich um physikalische Kräfte und keine chemischen Bindungen handelt, spricht man von *Adsorption* (von lat.: adsorbere = (an-)saugen) bzw. korrekter von *Physiosorption*. Maßgeblich für die Abscheidung sind drei verschiedene Wechselwirkungen, die dafür sorgen, dass ein Partikel an der Oberfläche verbleibt:

- den Sperreffekt
- die van-der-Waals-Kräfte und
- die elektrostatische Wechselwirkung.

Der *Sperreffekt* beschreibt in seiner ursprünglichen Form das Blockieren eines Partikels in einer Pore, deren Durchmesser zu eng für eine Passage ist. Die Oberflächenfiltration beruht demnach vor allem auf diesem Effekt. Da in der Tiefenfiltra-

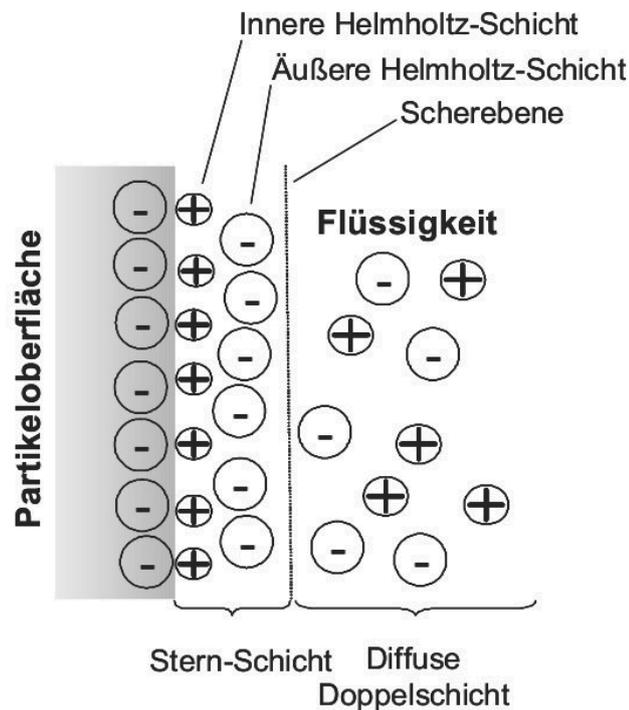


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung einer elektrischen Doppelschicht an einer Oberfläche in einem Fluid. Aus [41].

tion der Schwerpunkt des Interesses auf sehr kleinen Partikeln liegt, spielt dieser Abscheidemechanismus eine eher untergeordnete Rolle. Jedoch kann man auch das Verhaken von Partikeln an den Unebenheiten der Filteroberfläche als Sperrereffekt auffassen, denn diese Form der Abscheidung basiert ebenfalls auf rein geometrischen Wechselwirkungen [35, 39]. Die Oberflächenrauigkeit Δd_K von Präzisionsglaskugeln kann man laut [40] wie folgt abschätzen:

$$\Delta d_K = 10^{-3} \dots 10^{-2} r \quad (3.3)$$

Diese Unterschiede im Profil der Oberfläche bilden kleine Dellen, an denen (für ausreichend kleine Strömungsgeschwindigkeiten) Partikel hängen bleiben können.

Unter *van-der-Waals-Kräften* versteht man die vergleichsweise schwachen, kurzreichweitigen Kräfte, die durch vorhandene oder induzierte Dipole eine Anziehung zwischen zwei benachbarten Molekülen verursachen. Im engeren Sinne versteht man darunter die sogenannte *Londonsche Dispersionswechselwirkung*, auch London-Kräfte genannt, zwischen zwei polarisierbaren Molekülen. Diese Kräfte sind einer ständigen räumlichen und zeitlichen Fluktuation unterworfen, was sie von den elektrostatischen Wechselwirkungen unterscheidet.

Die *elektrostatische Wechselwirkung* beschreibt die Anziehung oder Abstoßung von zwei Körpern dadurch, dass sie ungleichnamige respektive gleichnamige elektrische Ladungen besitzen. Die elektrostatische Theorie [42, 43] beschreibt die Anziehung zwischen Partikeln in einem Fluid durch das Wirken der elektrolytischen Doppelschicht, einer durch Ladungsverschiebungen hervorgerufenen Raumladungszone. Nach ihrem Entdecker heißt sie auch Stern-Schicht [44]. Dabei geht man davon aus, dass sich der Körper, hier die Filteroberfläche, in einer elektrolythaltigen wässrigen Lösung mit dissoziierten Ionen befindet. Der Körper ist in diesem Fall immer von einer Schicht adsorbierter Moleküle umgeben, der elektrolytischen Doppelschicht (siehe Abbildung 3.4). Der Aufbau der Doppelschicht ist wie folgt: im Inneren befindet sich zunächst der Festkörper mit einer definierten Oberflächenladung. An diese feste Phase schließt sich nach außen hin eine homogene, gleichmäßig verteilte Flächenladung an, die sogenannte *innere Helmholtz-Schicht* [44]. Auf diese Monolage folgt eine weitere, weniger dichte Lage der entgegengesetzten Ladung, und schließlich wird die restliche Ladung, die benötigt wird, um die Oberflächenladung des Festkörpers abzuschirmen, in einer *diffusen Doppelschicht* vorgehalten (vgl. Abbildung 3.4). Hat man also z.B. jeweils Partikel mit negativen Oberflächenladungen und betrachtet man lediglich die Wechselwirkung der elektrolytischen Doppelschicht, so stoßen sich die beiden Partner ab. Als Maß für die Beschaffenheit der elektrolytischen Doppelschicht wird häufig das *Zetapotential* einer Partikelsuspension angegeben. Das Zetapotential ist das elektrische Potential, das sich zwischen der (festen) Helmholtzschicht des Partikels und der Flüssigkeit in einem großen Abstand vom Partikel ausbildet. Es wird gemessen, indem die elektrisch geladenen Partikel durch ein elektrisches Feld beschleunigt werden und deren Beweglichkeit gemessen wird. Als Grenze zwischen stark und schwach geladenen Partikeln wird häufig ein Wert von $\zeta = \pm 25 \text{ mV}$ angegeben.

3.2.3 Wechselwirkung an Oberflächen

Wie geladene Teilchen in einer wässrigen Lösung miteinander wechselwirken, wird durch die sogenannte DLVO-Theorie beschrieben. Sie wurde unabhängig voneinander von zwei Gruppen um **D**erjaguin und **L**andau (Russland 1941) sowie **V**erwey and **O**verbeek (Niederlande 1948) entdeckt und kombiniert die Einflüsse der (anziehenden) van-der-Waals-Wechselwirkung W_A mit der (abstoßenden) elektrostatischen Wechselwirkung der Doppelschichten W_R :

$$W = W_A + W_R \quad (3.4)$$

Diese Theorie beschreibt somit die *Summe der Wechselwirkungsenergie* zwischen den beteiligten Oberflächen. Die Wechselwirkungsenergie wird als Funktion des Abstandes von der Oberfläche angegeben. Im Rahmen der Filtrationstheorie werden zwei grundlegende Fälle unterschieden (siehe Abbildung 3.5):

1. Die Summe der Wechselwirkungsenergien als Funktion des Abstandes ist monoton mit dem Abstand steigend. In diesem Fall spricht man von anziehenden (engl. *favourable*) Filtrationsbedingungen, da die Partikel in der Nähe der Filteroberfläche keinen Widerstand durch das gemeinsame elektrische Feld erfahren sondern sogar in Richtung der Oberfläche beschleunigt werden.
2. Die Summe der Wechselwirkungsenergien als Funktion des Abstandes zeigt ein lokales Maximum. Dies bedeutet, dass die Partikel eine Energiebarriere überwinden müssen, um an die Oberfläche des Filters zu gelangen. Dieser Fall heißt nach seiner englischen Entsprechung *unfavourable*. In diesem Fall ist auch die Ausbildung eines zweiten - sekundären - Minimums möglich (siehe Abbildung 3.5).

Während für die Abscheidung von Partikeln unter anziehenden Bedingungen bereits ein umfangreiches Theoriwerk existiert, ist die Beschreibung von Filtration bei abstoßender Wechselwirkung ein relativ neues Feld, und dies obwohl in Filtrationssystemen natürlichen Ursprungs (z.B. im System Grundwasser-Kolloid-Boden) in der Regel abstoßende Wechselwirkungen vorliegen. Lange ging man davon aus, dass es bei abstoßender Wechselwirkung überhaupt nicht zu einer Filtrationswirkung kommen kann; neuere experimentelle Belege zeigen jedoch das Gegenteil. Sogar über einen Transport von Partikeln im sekundären Minimum entlang der Filteroberfläche, dass bei abstoßender Wechselwirkung auftreten kann, wird spekuliert [45].

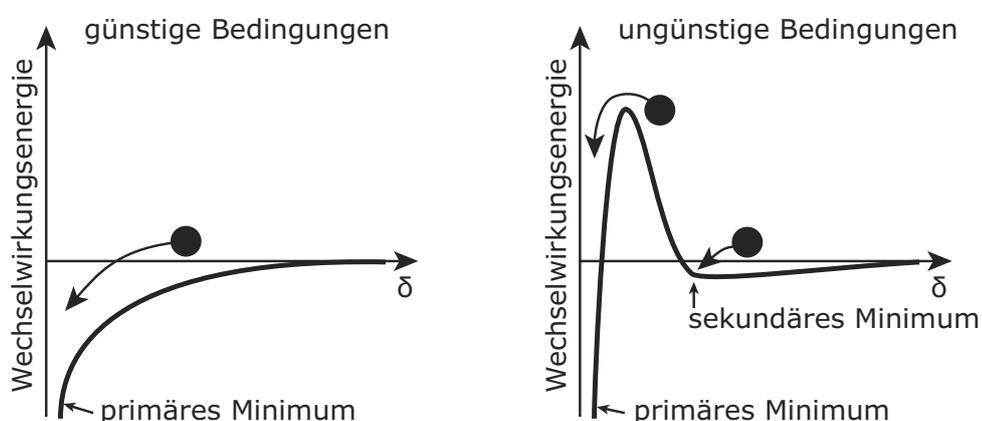


Abbildung 3.5: Schemaskizze zum Verlauf der Gesamt-Wechselwirkungsenergie als Funktion des Abstandes von der Oberfläche. Quelle: [46].

3.2.4 Empirische Filtergleichung nach Iwasaki

Für den Nutzer von Tiefenfiltern ist es vorrangig interessant zu wissen, wieviele Partikel im Filter auf einer bestimmten Filterlänge zurückgehalten werden, um den Filter auf die jeweilige Filtrationsaufgabe anpassen zu können. Für diese Zwecke wurde 1937 von Iwasaki [47] ein Modell vorgeschlagen, das einen Zusammenhang zwischen der im Filter zurückgelegten Strecke l und der Konzentration der Partikel C im Vergleich zur Ausgangskonzentration C_0 herstellt:

$$C = C_0 e^{-\lambda l} \quad (3.5)$$

Der Filterkoeffizient λ ist ein rein empirischer Faktor, dessen Aussagekraft auf jeweils ein ganz bestimmtes Partikel-Filter-System und definierte Strömungsbedingungen beschränkt ist. Daher werden derzeit alle in der Industrie verwendeten Tiefenfilter vor Gebrauch zunächst 'eingemessen', d.h. deren Filterkoeffizient λ bestimmt, damit dem Nutzer gegenüber eine Aussage über die Leistungsfähigkeit des Filters getroffen werden kann.

Das Modell von Iwasaki, dass in der obigen Form nur für den Fall eines *clean bed*, also eines sauberen Filters ohne Partikelabscheidungen definiert ist, sagt also aus, dass die Partikelkonzentration exponentiell mit der Filterlänge abfällt. Für den Fall anziehender Partikel-Filter-Wechselwirkung wurde diese Vorhersage vielfach experimentell bestätigt [38, 39, 48]. Auch mit Hilfe von Röntgentomographie wurden schon entsprechende Nachweise geführt. So hat Al-Abduwani [49] die exponentiell abfallende Konzentration von Hämatitpartikeln über der Filterlänge gezeigt, wobei es sich hierbei um einen Fall mit starker Anziehungskraft zwischen Partikeln und Filteroberfläche handelt.

In der aktuellen Literatur wird davon berichtet, dass bei abstoßender Wechselwirkung zwischen Partikel und Filteroberfläche Abweichungen vom exponentiellen Abfall der Partikelkonzentrationen beobachtet wurden. Dabei wurde sowohl von einem stärker als exponentiell abfallenden Verhalten berichtet [50] als auch von scheinbar regellosen, nichtmonotonen Verläufen [51].

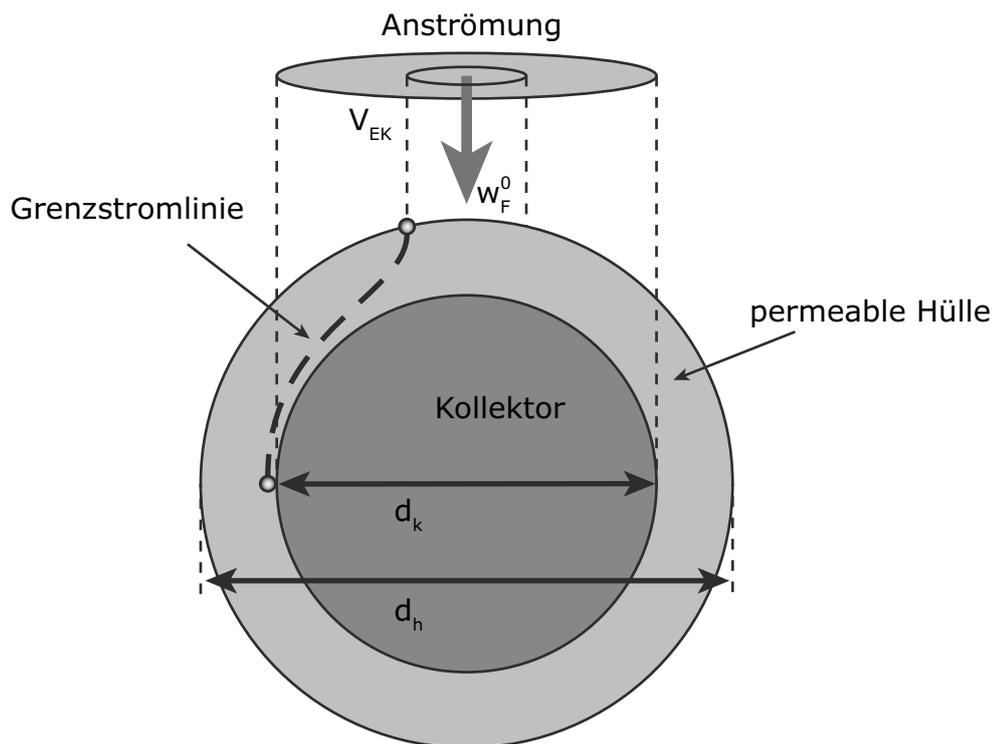


Abbildung 3.6: Schemaskizze des von Happel beschriebenen *sphere-in-cell*-Modells.

3.2.5 Abscheidung am Einzelkollektor

Aus den bisherigen Beiträgen dieses Abschnitts wird eine Diskrepanz zwischen der theoretischen Beschreibung von Prozessen im Filter und der praxisnahen Anwendung dieser theoretischen Größen offenbar. Die Aufgabe aktueller Forschung ist es, aus einem mikroskopischen Modell, an dem man die Prozesse des Transports und der Anlagerung versteht, den Filterkoeffizienten λ für den gesamten Filter auszurechnen oder zumindest abschätzen zu können. Hier gibt es mehrere Ansätze, von denen im folgenden das Einzelkollektormodell vorgestellt werden soll. Gleichzeitig muss man aber sagen, dass es beim derzeitigen Stand der Forschung noch nicht möglich ist, den Filterkoeffizienten λ für einen definierten Filter vorherzusagen, da dieser von sehr vielen miteinander interagierenden Größen abhängt, hauptsächlich vom Strömungsfeld und der Wechselwirkung zwischen Partikel und Filter.

Beim Einzelkollektormodell wird die Abscheidung in einem granularen Filter auf die Abscheidung von Partikeln an einem Ensemble isolierter Kugeln zurückgeführt [52]. Dabei betrachtet man das Strömungsfeld um eine Einzelkugel, und versucht durch Lösen der Bewegungsgleichung Trajektorien für einzelne Partikel auszurechnen [53]. Es ist unmittelbar einsichtig, dass dies in der Praxis ausschließlich numerisch geschehen kann.

Für die Anlagerung an einer Einzelkugel ist es zunächst wichtig, den Anteil der Partikel in der Suspension zu kennen, die in Richtung der Oberfläche des Kollektors transportiert werden, da nur diese für eine Anlagerung in Betracht kommen. Der auf einen Einzelkollektor entfallende Anteil \dot{V}_{EK} am Gesamtvolumenstrom \dot{V} kann aus den geometrischen Gegebenheiten und der Leerrohrgeschwindigkeit w_F^0 leicht berechnet werden:

$$\dot{V}_{EK} = \frac{d_K^2 \pi}{4} w_F^0 \quad (3.6)$$

Von dem auf eine Kugel entfallenden Volumenstrom \dot{V}_{EK} gelangt aber nur Teil \dot{V}_A bis an die Oberfläche der Filterkugel. Der Quotient $\eta = \frac{\dot{V}_A}{\dot{V}_{EK}}$ stellt das Verhältnis dieser beiden Volumenströme dar; man spricht bei dieser Größe auch von der *Einzelkollektoreffizienz*, welche mit η bezeichnet wird. Wenn \dot{V}_A bekannt ist, kann man also auch den Filterkoeffizienten λ eines Filters mit der Porosität ε aus rein geometrischen Beziehungen berechnen [52] [54]:

$$\lambda = \frac{3(1-\varepsilon)}{2} \frac{\eta \alpha}{d_K} \quad (3.7)$$

Die neu eingeführte Größe α beschreibt dabei die sogenannte *sticking efficiency*, die angibt, wieviele der Partikel, die auf die Oberfläche treffen, auch tatsächlich dort abgeschieden werden. Sehr häufig nimmt man einfach an, dass alle Partikel haften bleiben (sog. *perfect sink model*), also dass gilt: $\alpha = 1$. Die einzige unbekannte Größe in Gleichung 3.7 ist somit der Volumenstrom auf die Oberfläche der Kugel. Dieser wird numerisch ermittelt, und in der Regel wird dabei das Modell von Happel [55] für das Geschwindigkeitsfeld einer repräsentativen Einzelkugel in einer Kugelpackung verwendet. Das Happel-Modell basiert darauf, dass der Poren- und Festkörperanteil des gesamten Filters auf ein Ensemble gleichgroßer Kugeln (spheres) aufgeteilt wird, die von einer Flüssigkeitsschicht (cell) umgeben sind (vergleiche Abbildung 3.6). Die geometrische Annahme ist dabei, dass die Summe der Einzelkugeln die Gegebenheiten im Filter widerspiegelt, d.h. der Anteil des Hüllenvolumens am Gesamtvolumen entspricht der Porosität der Packung. Happel beschreibt in seinem Modell das Strömungsfeld um eine solche Kugel analytisch; im Gegensatz z.B. zur freien Stokesschen Umströmung einer Kugel wird dabei durch die Hülle auch der Einfluss der anderen Kugeln teilweise abgebildet. Nun ist man bestrebt, diese Differentialgleichungen für verschiedenen Betriebszustände des Filters (Leerrohrgeschwindigkeiten, Porositäten, Kugelgrößen,...) zu lösen, um die Einzelkollektoreffizienz als Funktion dimensionsloser Kennzahlen des Filters zu beschreiben.

Die Schwächen des Happel-Modells bestehen vor allem darin, dass es zwar durch die Beschreibung der flüssigen Hülle eine prinzipielle Begrenzung des Strömungsfeldes berücksichtigt, jedoch die Einflüsse, die durch einander berührende Kugeln entstehen, nicht abbildet. Daher kann es im Happel-Modell auch keine Abscheidung an Kugel-Kugel-Kontaktpunkten geben, die aber vor allem bei abstoßender Wechselwirkung eine wichtige Rolle spielen, wie der folgende Abschnitt zeigt.

3.2.6 Partikelabscheidung an Kugel-Kugel-Kontakten

In letzter Zeit gibt es in der Fachliteratur verstärkt theoretische Betrachtungen [56] und experimentelle Belege für die Signifikanz von Partikelabscheidungen an Filterkorn-Kontakten bei abstoßender Wechselwirkung zwischen Partikel und Filterkorn [51, 57–60]. Der Nachweis, dass ein solches *Wedging* stattgefunden hat, erfolgt bisher über die Interpretation von Bildern endoskopischer bzw. nichtzerstörender Messverfahren. Es gibt zum einen röntgentomographische Untersuchungen, die *Wedging* exemplarisch belegen [51, 57], zum anderen lichtmikroskopische bzw. endoskopische Untersuchungen [58, 59].

Bei den röntgentomographischen Untersuchungen von Li et al. [51] wurden hohle Goldkugeln mit einem mittleren Durchmesser von $36 \mu\text{m}$ jeweils in einer Glaskugelschüttung und in Quarzsand mit einem mittleren Durchmesser im Bereich $d_K = 710 - 850 \mu\text{m}$ abgeschieden. Die Bildauswertung erfolgte dabei durch visuelle Inspektion: Schicht für Schicht wurde gezählt, ob ein sichtbares Partikel in der Nähe von zwei Filterkorn-Kontakten abgeschieden wurde oder nicht. Als Ergebnis wurden in diesem Artikel Konzentrationsprofile vorgestellt, die einen nichtmonotonen Verlauf der Partikelkonzentration mit der Filterlänge zeigen und die zudem lokale Maxima aufweisen. Dabei zeigte sich, dass der nichtmonotone Verlauf vor allem auf die durch Straining abgeschiedenen Partikel zurückzuführen ist. Es wird spekuliert, dass das nichtmonotone Verhalten daher rührt, dass die im sekundären Minimum gebundenen bzw. assoziierten Partikel auf der Oberfläche weitertransportiert werden, bis sie schließlich in einem geeigneten Filterkorn-Kontakt abgeschieden werden.

In einer weiteren Arbeit von Gaillard et al. [57] wurde kolloidales Zirkonoxid (ZrO_2) in einer Schüttung aus Glaskugeln mit einem Durchmesser im Bereich $d_K = 180 - 250 \mu\text{m}$ abgeschieden. In diesem Fall wurde, wie auch in der hier vorliegenden Arbeit, differentielle Röntgentomographie auf Basis von Synchrotronstrahlung verwendet, um die Kolloide darzustellen. In dieser Arbeit wird eine nahezu neutrale Wechselwirkung zwischen den Partikel und den Filterkugeln angegeben. Es werden keine Einzelpartikel beobachtet, sondern sehr große Cluster, die aus mehreren

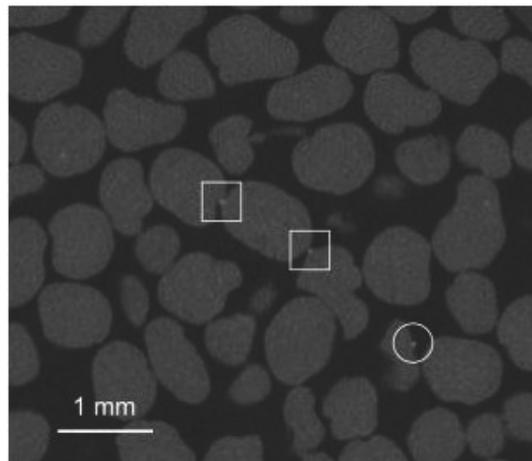


Abbildung 3.7: Tomographische Ebene durch ein Filterbett aus Quarzsand mit abgeschiedenen Goldkugeln (weiße Punkte). Punkte mit quadratischem Rahmen sind durch Straining, Punkte mit rundem Rahmen durch andere Mechanismen abgeschiedenen Partikel. Bild entnommen aus [51].

hundert Einzelpartikeln bestehen. Allerdings erfolgt keine Lagebeschreibung der Partikelcluster, sondern lediglich die Angabe, dass die Partikel heterogen in der Schüttung verteilt sind.

Johnson et al. [58] sowie Xu et al. [59] haben durch optische Experimente Bilder von durch Straining abgeschiedenen Partikeln gewinnen können. Durch die Art der experimentellen Methode sind diese Bilder immer nur exemplarischer Natur, da auch bei guten Bedingungen nur einzelne Poren bzw. Kugeloberflächen abgebildet werden können. Zudem können - wenn, wie in diesen beiden Fällen, keine Brechungsindexanpassung verwendet wird - nur Kugeln beobachtet werden, die sich direkt an der Filterzellen-Wand befinden. Dadurch sind die Strömungsverhältnisse durch die Randlage und die sich daraus ergebenden Ordnungsphänomene (vgl. Abschnitt 2.2.2) beeinflusst. Von einer Anordnung, die die Verhältnisse im Inneren einer Kugelschüttung repräsentiert, kann also nur bedingt die Rede sein. Nichtsdestotrotz geben die Bilder hervorragend wieder, wie wichtig Straining als Abscheidemechanismus im Regime abstoßender Wechselwirkung ist.

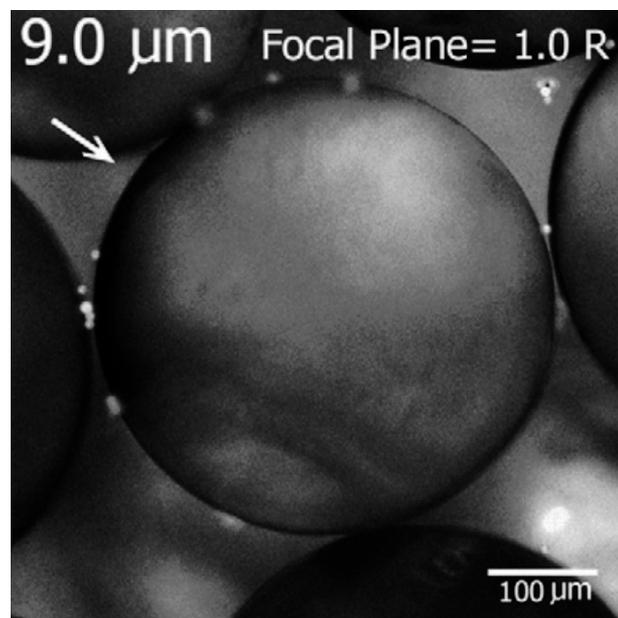


Abbildung 3.8: Abscheidung von Partikeln mit einem Durchmesser von $d_p = 9\mu m$ an Glaskugeln mit einem Durchmesser von $d_p = 750\mu m$. Deutlich ist zu erkennen, dass Partikel vor allem an Filterkorn-Kontakten abgeschieden werden. Bild entnommen aus [58].

4 Experimentelle Aufbauten

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Filtrationsstand aufgebaut, mit dessen Hilfe man die Abscheidung von Kolloiden in einem granularen Filterbett mit röntgentomographischen Methoden beobachten kann. Die Filterzelle soll dabei möglichst groß sein, um sowohl Filterbereiche studieren zu können, die von Wandordnung geprägt sind, als auch *bulk*-Bereiche, die eine zufällige Anordnung der einzelnen Filterkörner zeigen. Diese beiden Bereichen unterscheiden sich stark in ihrer Packungs- bzw. Porenkonfiguration und damit auch in den strömungsmechanischen Bedingungen, die in ihnen vorgefunden werden. Die Abscheidung von Kolloiden in diesen beiden Bereichen des Tiefenfilters zu studieren, bildet einen Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit.

Möchte man große Objekte wie den hier benutzten Tiefenfilter röntgentomographisch abbilden, wird bei gleicher Beschaffenheit des Detektors eine geringere räumliche Auflösung erzielt als bei der Abbildung kleinerer Objekte. Dies bedeutet, dass die Kolloide, die zur Filtration verwendet werden, durch ihre geringe Größe nur schwer abgebildet werden können. Um ferner die Sedimentation der Kolloide möglichst gering zu halten, sollte ihre Dichte nicht wesentlich von der des Trägermediums, destilliertem Wasser, abweichen. Dies wirkt sich zusätzlich erschwerend auf die röntgentomographische Abbildung der Kolloide aus, denn dadurch kommen als Material für die Partikel nur sehr leichte Materialien infrage, die in der Regel kleine Protonenzahlen haben und damit eine geringe Absorption zeigen. Die wesentliche Anforderung an das Experiment ist jedoch, dass die Kolloid-Ablagerungen im Tomogramm *sichtbar* sind.

In Vorversuchen wird zunächst gezeigt, dass mit der zum Zeitpunkt des Experimentes am Lehrstuhl für Magnetofluidynamik vorhandenen Labor-Röntgentomographieanlage keine zuverlässige Darstellung von kleinen Partikeln erfolgen kann. Die an dieser Anlage erreichte Dichte- und räumliche Auflösung reicht für diese Fragestellung nicht aus. Daher wird für das Experiment eine differentielle Bildgebungstechnik verwendet, die jedoch ausschließlich mit monochromatischer Röntgenstrahlung durchgeführt werden kann. Daher wurde das im folgenden vorgestellte Experiment für die Verwendung an einer Synchrotronstrahlungsquelle konzipiert. Neben den technischen Anforderungen, wie der geeigneten Wahl des Partikelmaterials für eine differentielle Bildgebung und der vollständigen Drehbarkeit der Zelle, ist vor allem zu beachten, dass durch die Kürze der zur Verfügung stehenden Messzeit die Variation der Filtrationsparameter nur innerhalb eines kleinen Parameterraumes

erfolgen kann, in dem eine ausreichend hohe Abscheidung der Kolloide zu erwarten ist.

4.1 Voruntersuchungen

Um zu überprüfen, ob Partikelabscheidungen in einem Tiefenfilter mit der Labor-Röntgentomographieanlage LeTo des Lehrstuhls für Magnetofluidynamik sichtbar gemacht werden können, wurde eine Reihe von Vorversuchen durchgeführt. Die technischen Details der Röntgentomographie-Anlage sind in [61] beschrieben. Bei diesem Filtrationsexperiment wurden die verwendete Zelle und die Suspensionspartikel so gewählt, dass eine möglichst große Menge stark absorbierenden Partikelmaterials im Filter verbleibt. Dies ist, wie bereits in Kapitel 4.2 dargelegt, aufgrund der polychromatischen Strahlung der Laboranlage und der geringen Größe der Partikel nötig, um überhaupt Abscheidungen beobachten zu können. Für die Vorversuche wurde eine wässrige Suspension von MagSilika[®]-Partikeln verwendet. Dies sind Partikel, die aus einem Hämatit-Kern (Fe_2O_3) mit einer Glasbeschichtung bestehen. Sie haben Durchmesser im Bereich von $d_P = 200 - 300 \mu\text{m}$. Durch den eisenhaltigen Kern ist eine hohe Röntgenabsorption gewährleistet (Protonenzahl von Eisen: $Z_{\text{Fe}} = 26$), gleichzeitig bietet die Glas-Ummantelung Schutz gegen Korrosion und vereinfacht die Suspendierbarkeit der Partikel im Wasser. Die Partikel wurden mit einer Volumenkonzentration von 500 ppm in destilliertem Wasser suspendiert und in die in Abschnitt 4.5 vorgestellte Fördereinheit eingebracht.

Die zu den Vorversuchen verwendete Filtrationszelle (siehe Abbildung 4.1) ist eine modifizierte, größere Version der in Abschnitt 4.4 vorgestellten Zelle. Insbesondere ist der Innendurchmesser größer ($d_I = 10 \text{ mm}$) als bei der im Synchrotronexperiment verwendeten Variante ($d_I = 6 \text{ mm}$). Als Kugelschüttung wurden die ansonsten üblicherweise für das Seeding [62] in Particle-Image-Velocimetry-Experimenten (PIV) genutzten Polystyrolpartikel verwendet. Die Filterkugeln haben einen Durchmesser von etwa $d_K = 1,6 - 1,9 \text{ mm}$, damit wird in der Schüttung ein mittleres $\frac{d_I}{d_K}$ -Verhältnis von ca. 5,7 erreicht. In Abbildung 4.2 ist ein Tomogramm dieser (trockenen) Schüttung abgebildet. Vorteilhaft an den verwendeten Polystyrolkugeln ist, dass sie sich unter leichtem Druck gut in der Packung festklemmen lassen, d.h. sich ein wenig deformieren und damit ihre Position auch bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten beibehalten.

Zur Filtration wurden etwa 200 ml der Suspension von unten nach oben durch die Packung geführt. Nach der Filtration war die gesamte Zelle von außen betrachtet völlig schwarz, also gut mit Magsilika-Partikeln angereichert. Allerdings spiegelt sich nur ein sehr kleiner Teil der von außen beobachteten Ablagerungen im Tomo-

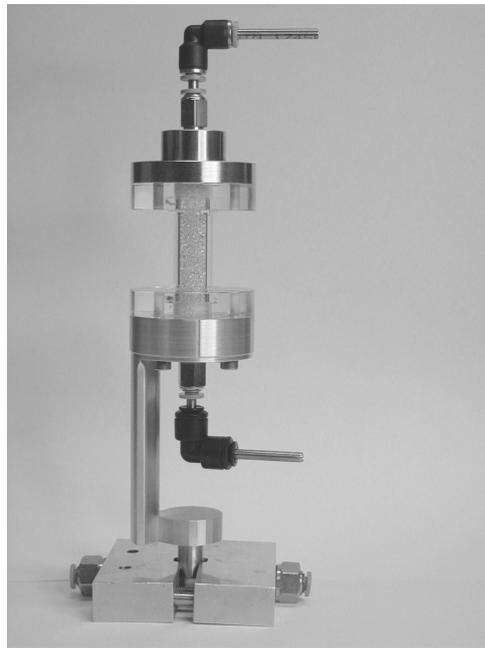


Abbildung 4.1: Fotografie der Filtrationszelle, die für die Voruntersuchungen verwendet wurde. Der Adapter, auf dem sich die Zelle befindet, wurde benötigt, um die Zelle vollständig rotieren zu können sowie um die Höhe relativ zur Röntgenquelle einzustellen.

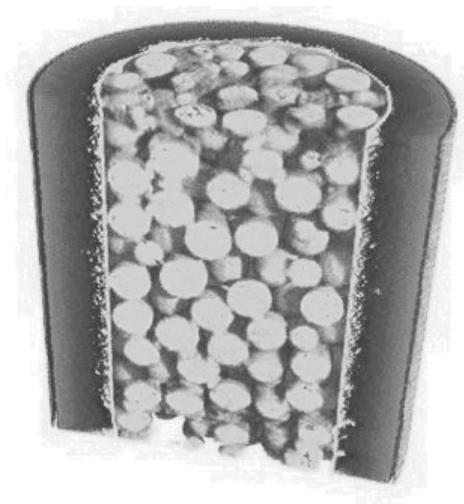


Abbildung 4.2: Rendering der leeren Schüttung in einem Vorversuchs-Aufbau.

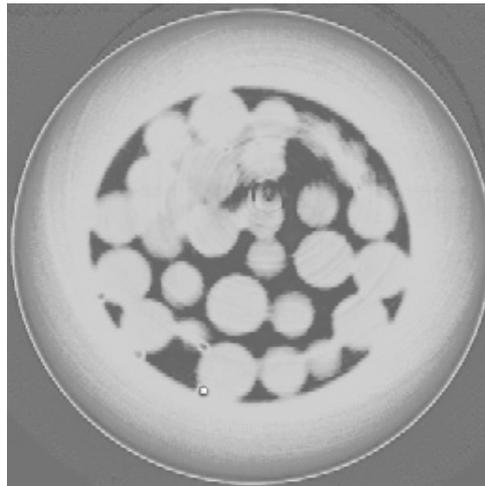


Abbildung 4.3: Ablagerungen von MagSilika-Partikeln in der Schüttung. Mithilfe polychromatischer Strahlung sind nur sehr wenige Ablagerungen detektierbar, obwohl der Filter stark beladen ist.

gramm wider (siehe Abbildung 4.3). Im Tomogrammschnitt sind nur sehr wenige stark absorbierende Bereiche im Inneren der Filterschüttung zu erkennen. Was man jedoch sehr gut beobachtet, ist eine ausgeprägte *Strahlaufhärtung* (vgl. Abschnitt 1.1.1), die sich darin äußert, dass in der eigentlich homogenen Wand der Filterzelle ein starker Gradient des Absorptionskoeffizienten auftritt. Was man darüber hinaus beobachtet, sind starke Ringartefakte, die durch ungleichmäßig arbeitende Pixel im CCD-Chip der Kamera zustande kommen. Diese Tatsachen zusammen zeigen, dass eine quantitative Auswertung von Kolloidabscheidungen mit der vorhandenen Labortomographieanlage nicht verfolgt werden kann.

4.2 Bildgebung von Kolloiden

Die für die folgenden Experimente genutzte röntgentomographische Methode wird als differentielle Tomographie bezeichnet. Sie setzt die Nutzung monochromatischer Röntgenstrahlung voraus. Dabei nutzt man aus, dass die Energieabhängigkeit der Röntgenabsorption von Elementen an sogenannten *Absorptionskanten* vom typischen monoton fallenden Verhalten abweicht. Indem man zwei Tomogramme bei geeignet gewählten, nur geringfügig verschiedenen Energien aufnimmt, kann man zwischen den beiden Tomogrammen einen starken Absorptionsunterschied für dieses spezielle Element erzielen. Die dabei in Betracht kommenden Absorptionskanten müssen bei einer Photonenenergie liegen, die auch tatsächlich für die Bildgebung verwendet werden kann. Bei der in dieser Arbeit genutzten Beamline W2 am HASYLAB/DESY kann die Energie für Bildgebungsexperimente in einem Intervall von $E = 20 - 150 \text{ keV}$ eingestellt werden. Das bedeutet, dass prinzipiell die

Eigenschaft	Silber	Gold
E_{K_α} (keV)	25,5	80,7
Beschichtungsdicke (nm)	ca. 100	ca. 100
$\mu(E_{K_\alpha})$ ($cm^2 g^{-1}$)	60	8,9
Dichte ρ ($g cm^3$)	10,5	19,3
$\mu(E_{K_\alpha}) \rho$ (cm^{-1})	630	172

Tabelle 4.1: Vergleich der Röntgenabsorptionseigenschaften von Silber und Gold als Beschichtungsmaterial für kolloidale Partikel.

K_α -Kanten aller Elemente ab einer Protonenzahl von 42 - dies entspricht Molybdän ($E_{K_\alpha} = 20,0 \text{ keV}$) - für die Bildgebung von Kolloiden infrage kommen.

Nun werden jedoch für das beschriebene System nicht nur die Kolloide abgebildet, sondern auch die übrigen Komponenten, also das granulare Filtermaterial und das Wasser der Suspension. Daher muss man die Photonenenergie, die man bei einer Synchrotrontomographie verwenden möchte, vorher abschätzen, um ein gutes Kontrastverhältnis für das gesamte Tomogramm zu erhalten. Da die Energieverläufe der Röntgenabsorptionskoeffizienten von Standardmaterialien in der Literatur gefunden werden können, kann man anhand Gleichung 1.5 die erwartete Absorption ermitteln. Für ein optimales Signal-zu-Rausch-Verhältnis sollte dabei, wenn möglich, $\mu x \approx 2$ (siehe Gleichung 1.5) gelten [63]. Da die Materialien der Filtrationszelle gegeben sind - PMMA für den Filtrationszylinder, Borosilikatglas für die granulare Schüttung, war die Wahl des Elementes, dass für die Kolloidabbildung genutzt wurde, von vorn herein eingeschränkt.

Da die Dichte der Kolloide relativ gering sein sollte, um eine geringe Sedimentation im Trägermedium zu erreichen, wurden Polystyrenkugeln gewählt, die mit einem stark absorbierenden Element beschichtet sind. Für diese Beschichtung bieten sich in erster Linie Silber und Gold an, wobei Silber aufgrund seiner stärkeren Absorption und der für das Gesamtsystem günstigeren K_{α} -Energie der Vorrang gegeben wurde. Die Partikel wurden vom Berliner Hersteller Microparticles [65] gefertigt. In Tabelle 4.1 sind die Eigenschaften dieser Partikel zusammengefasst. Die Nenngröße der gelieferten Partikel beträgt $d_p = 9,81 \mu m$. Die Lieferung erfolgte als wässrige Suspension mit einem Partikelanteil von 5 Vol%.

In Abbildung 4.4 ist der prinzipielle Verlauf der Röntgenabsorption von elementarem Silber über der Photonenenergie aufgetragen. Man sieht die Absorptionskante bei $E_{Ph} = E_{K_\alpha} = 25.5 \text{ keV}$. Hier versiebenfacht sich die Absorption innerhalb eines sehr kleinen Energie-Intervalls von weniger als einem keV. Dieser Umstand ermöglicht

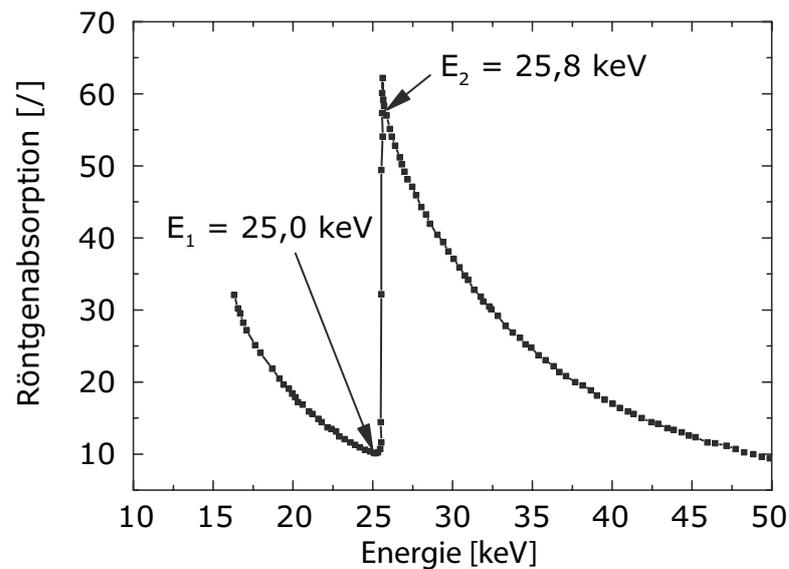


Abbildung 4.4: Verlauf des Absorptionskoeffizienten von Silber in der Nähe der K_{α} -Absorptionskante. Nach [64].

den Einsatz der oben beschriebenen *differentiellen Tomographie*. Die in diesem Experiment genutzten Photonenenergien betragen $E_1 = 25.0 \text{ keV}$ und $E_2 = 25.8 \text{ keV}$. Dabei erzeugt die höhere der beiden Energien ein Tomogramm, in dem die Kolloide sehr hell erscheinen (siehe Abbildung 4.5 rechts) und die niedrigere der beiden ein Tomogramm, in dem sich die Kolloide nur schwer vom sie umgebenden Fluid unterscheiden lassen (links).

Man verwendet diese Zwei-Bild-Technik, um gesicherte Aussagen über die Lage der Kolloidabscheidungen treffen zu können. Beim Vergleich der beiden Tomogramme ist das elementare Silber die einzige Komponente, die einen starken *Anstieg* der Absorption mit steigender Energie zu verzeichnen hat. Alle anderen Komponenten (Borosilikatglas, Wasser, PMMA) zeigen in diesem Energiebereich eine monotone, leichte Abnahme der Röntgenabsorption mit steigender Energie. Das ist für die weitere Bildverarbeitung der Tomogramme der entscheidende Unterschied, denn auf diese Weise können positive Bereiche des Differenzbildes $I_{Diff} = I_{E_2} - I_{E_1}$ sofort mit silberhaltigen Bestandteilen des Filterbettes, also den Kolloidablagerungen, identifiziert werden. Entsprechend treten keine Binarisierungsprobleme auf, was häufig passiert, wenn Materialien mit ähnlicher Röntgenabsorption in digitalen Bildern voneinander getrennt werden müssen (z.B. verschiedene Arten biologischen Gewebes, siehe z.B. [66, 67]).

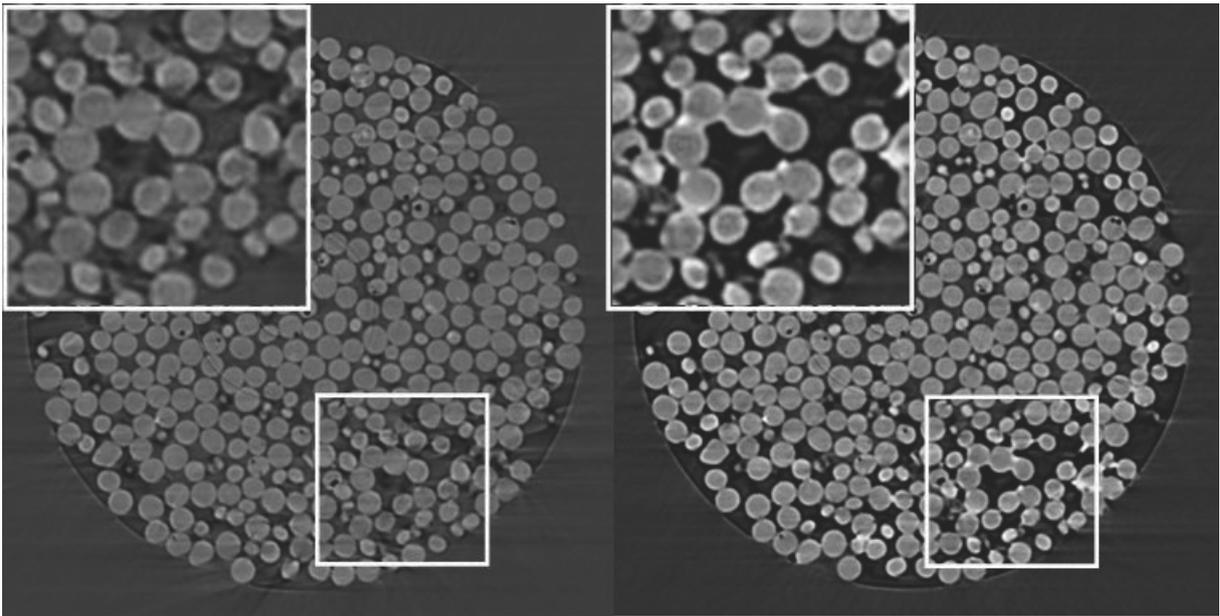


Abbildung 4.5: Differentielle Tomographie. Links: Tomogrammschicht bei $E = 25,0 \text{ keV}$; es werden nur Filterkugeln und Wasser dargestellt. Rechts: Tomogrammschicht bei $E = 25,8 \text{ keV}$; die Silberbeschichtung der Kolloide zeigt eine verstärkte Absorption (helle Bereiche).

4.3 Aufbau der Tomographieanlage

Differentielle Röntgentomographie kann mit einer gewöhnlichen synchrotronbasierten Röntgentomographieanlage durchgeführt werden. Erforderlich ist lediglich das präzise Einstellen der Photonenenergie E_{Ph} nahe der K_α -Kante. Zudem muss gewährleistet sein, dass ausschließlich die gewünschte Komponente im betrachteten Energiebereich einen Absorptionsanstieg zeigt. An der verwendeten Beamline wird die Filterung des weißen, d.h. polychromatischen, Röntgenlichts mit Hilfe eines Si(111)-Einkristall-Monochromators durchgeführt. Dabei erfüllt nur ein sehr kleiner Teil der polychromatischen Strahlung die Braggsche Beugungsbedingung für konstruktive Interferenz. Der überwiegende Teil der Strahlung passiert den Kristall ungehindert, und muss vernichtet, d.h. in einem Absorber aufgefangen werden, wobei eine enorme Wärmelast auftritt. Lediglich der monochromatische Strahlungsanteil wird für das Bildgebungsexperiment genutzt, weshalb ein hoher initialer Strahlungsfluss vonnöten ist, damit die verbleibende Photonenintensität am Probenort ausreichend hoch ist. Dies ist der Grund, weshalb diese Art Experiment ausschließlich an Synchrotron-Strahlungsquellen durchgeführt werden kann.

Die hier beschriebenen Experimente wurden an der am HASYLAB/DESY installierten Tomographieanlage DiTo [68] durchgeführt, die sich an der Beamline für Hochen-

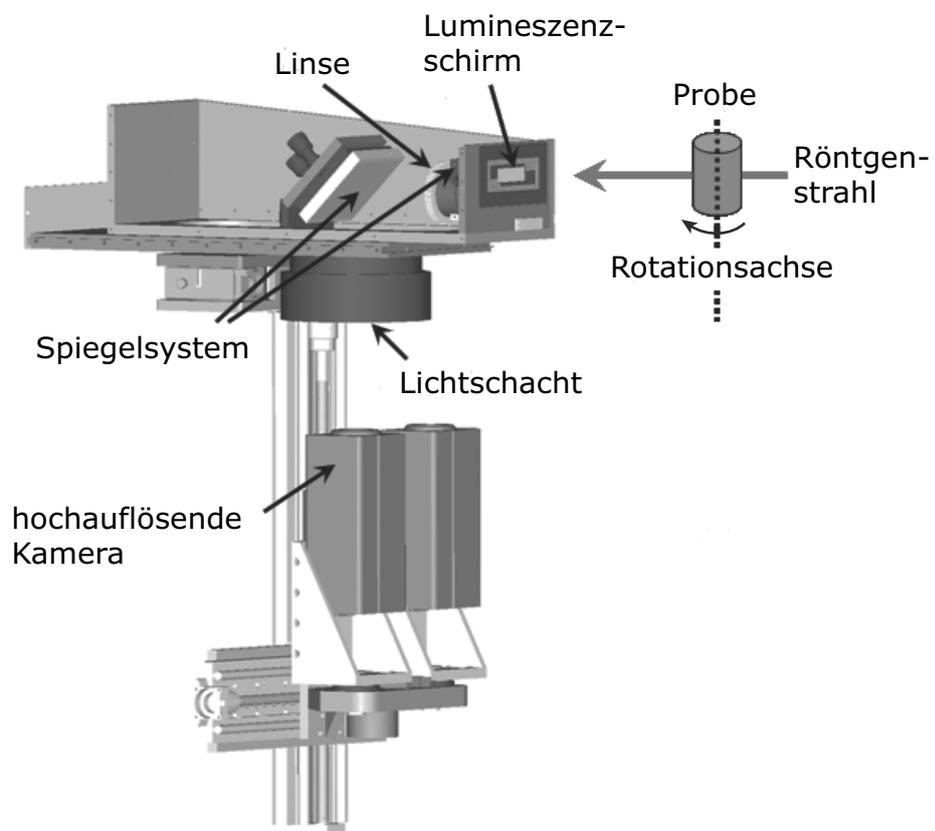


Abbildung 4.6: Aufbau der optischen Komponenten der Tomographieanlage DiTo.
Nach [68].

	PCO 2000	PCO 4000
Detektorgröße (<i>Pixel</i>) ²	2048 x 2048	4008 x 2672
physikalische Größe eines Pixels (μm) ²	7,4 x 7,4	9 x 9
Größe des Detektors (<i>mm</i>) ²	15,2 x 15,2	36,6 x 24,5
Ausleserate (Bilder pro Sekunde)	14,7	9

Tabelle 4.2: Vergleich der in DiTo genutzten Kameratypen

ergetische Röntgen-Materialwissenschaften (High-Energy X-Ray Material Science) befindet [69], die wiederum von dem zur Helmholtz-Gemeinschaft gehörenden Materialforschungsinstitut GKSS betrieben wird. Der prinzipielle Aufbau und die Funktionsweise einer Tomographieanlage wurden bereits in Kapitel 1 beschrieben, daher sollen an dieser Stelle nur kurz die technischen Kenngrößen dieser speziellen Anlage dargestellt werden. Die Bildgebungseinheit der Tomographieanlage ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Ihre Aufgabe ist die Umwandlung der Röntgenstrahlung in sichtbares Licht, sowie die Vergrößerung des so erhaltenen Bildes und seine Fokussierung auf den Detektor der CCD-Kamera. Dabei ist der Strahlengang so gestaltet, dass das sichtbare Licht um 90° umgelenkt wird, so dass die Kamera nicht direkt der Röntgenstrahlung ausgesetzt ist. Die Röntgenstrahlung wird mit Hilfe eines Cadmium-Wolframat (CdWO_4) - Lumineszenzschirms umgewandelt, dessen Emissionsmaximum bei einer Wellenlänge von $\lambda = 480 \text{ nm}$ (blaugrün) liegt. Mit Hilfe eines Linsensystems (Schneider-Kreuznach) wird das Abbild vergrößert, wobei ein Vergrößerungsbereich von $M = 1,7$ bis $M = 7,9$ abgedeckt werden kann. Ein ebener Spiegel lenkt das Licht in den optischen Schacht mit den Kameras. In der betrachteten Anlage können zwei verschiedene Kameras mit jeweils 14 Bit Graustufenauflösung verwendet werden, die je nach Anforderung aktiviert werden. Es handelt sich dabei um Kameras der Firma PCO [70]; einerseits die kleinere PCO 2000, die bei einer Detektorgröße von $2048 * 2048$ (*Pixel*)² mit sehr hohen Datenraten ausgelesen werden kann (bis zu 14,7 Vollbilder pro Sekunde). Andererseits die PCO 4000, die mit ihrem sehr großen CCD-Chip von $4008 * 2672$ (*Pixel*)² für die hochauflösende Abbildung relativ großer Proben mit einer Kantenlänge von mehr als 1 cm geeignet ist. In Tabelle 4.2 sind die wichtigsten Parameter der beiden Kameras zusammengefasst. Für die Filtrationsexperimente wurde die Vergrößerung auf $M = 3,21$ gesetzt, was einer Voxelgröße von $5,9 \mu\text{m}^3$ im Tomogramm entspricht. Für einen Scan wurden 2000 Absorptionbilder bei einer Photonenenergie von $E = 25,0 \text{ keV}$ bzw. $E = 25,8 \text{ keV}$ aufgenommen.

4.4 Aufbau der Filtrationszelle

Die Filtrationszelle ist das Kernstück des hier beschriebenen Experimentaufbaus. Sie dient dazu, die Packung, in der die Kolloidabscheidungen untersucht werden sollen, zu fixieren und gewährleistet, dass diese gleichmäßig mit einer Suspension von Kolloiden durchströmt werden kann. Die Zelle wurde in Kooperation mit Michael Heiland vom Institut für Umweltverfahrenstechnik der Universität Bremen konstruiert und dort gefertigt. Die Filtrationszelle besteht aus einem Hohlzylinder aus Polymethylmethacrylat (PMMA), umgangssprachlich auch als Plexiglas oder Acrylglas bezeichnet, mit einem Innendurchmesser von $D_i = 6 \text{ mm}$ (siehe Abbildung 4.7). Oben und unten schließen sich in den Zylinder passende Einsätze aus Edelstahl an, die den Anschluss an das Schlauchsystem des Experimentes herstellen. Im Zylinder sind in einem vertikalen Abstand von 10 mm zwei kreisförmige Edelstahlgitter fixiert, die eine Drahtstärke von $d_D = 71 \text{ }\mu\text{m}$ und eine Apertur von $d_A = 100 \text{ }\mu\text{m}$ besitzen. Zwischen den beiden Gittern wird die Schüttung eingebracht. Die zufällige Packung wird folgendermaßen erzeugt: Zunächst ist nur das untere Gitter positioniert, das Träger der Kugeln ist. Borosilikat-Glaskugeln (Fa. Worf, Mainz) mit einem Nenndurchmesser von $d_K = 250 - 300 \text{ }\mu\text{m}$ werden in kleinen Portionen in den Zylinder geschüttet. Durch Klopfen und Rütteln des Zylinders nach jeweils dem Zufügen einer kleinen Portion Glaskugeln wird erreicht, dass sich die Packung bestmöglich verdichtet. Ist die gesamte Glaskugelmenge ($m = 0,44 \text{ g}$) hinzugefügt, wird unter größtmöglichem Anpressdruck der obere Edelstahlstecker von Hand aufgesetzt und mit einer Madenschraube fixiert. Bei der so erzeugten Schüttung wurde eine mittlere Porosität von $\varepsilon = 0,404$ (Experiment 1) bzw. $\varepsilon = 0,409$ (Experiment 2) ermittelt. Das Verhältnis von Innendurchmesser zu Kugelgröße ist $D_i/d_K = 6 \text{ mm} / \frac{(300-250)\mu\text{m}}{2} = 21,8$; d.h. es passen im Mittel knapp 22 Kugeln auf den Filterdurchmesser. Die Filterzelle ist über Teflonschläuche mit einem Innendurchmesser von $d_S = 2 \text{ mm}$ an das Suspensions-Reservoir (Spritzenpumpe) bzw. den Filtrat-Behälter angeschlossen (siehe Abbildung 4.8).

4.5 Suspension und Volumenstrom

Die verwendete Partikelsuspension besteht aus den silberbeschichteten Polystyrenpartikeln, destilliertem, entgastem Wasser sowie einer geringen Menge KCl-Lösung, um das Zetapotential der Glaskugeln herabzusetzen. Die genauen Mengenangaben sind in Tabelle 4.3 aufgelistet.

Die Komponenten wurden in einem Becherglas gemischt und der pH-Wert der Suspension bei einer Temperatur von $T = 22,7 \text{ }^\circ\text{C}$ zu $pH = 6,98$ ermittelt, sowie die

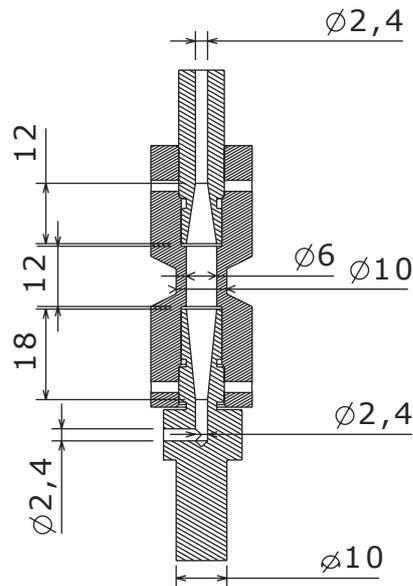


Abbildung 4.7: Schnitt durch die Filtrationszelle: Das mittlere Bauteil bildet zusammen mit den oberen und unteren Einsätzen aus Edelstahl eine zylindrische Kavität, in der sich die Schüttung befindet.

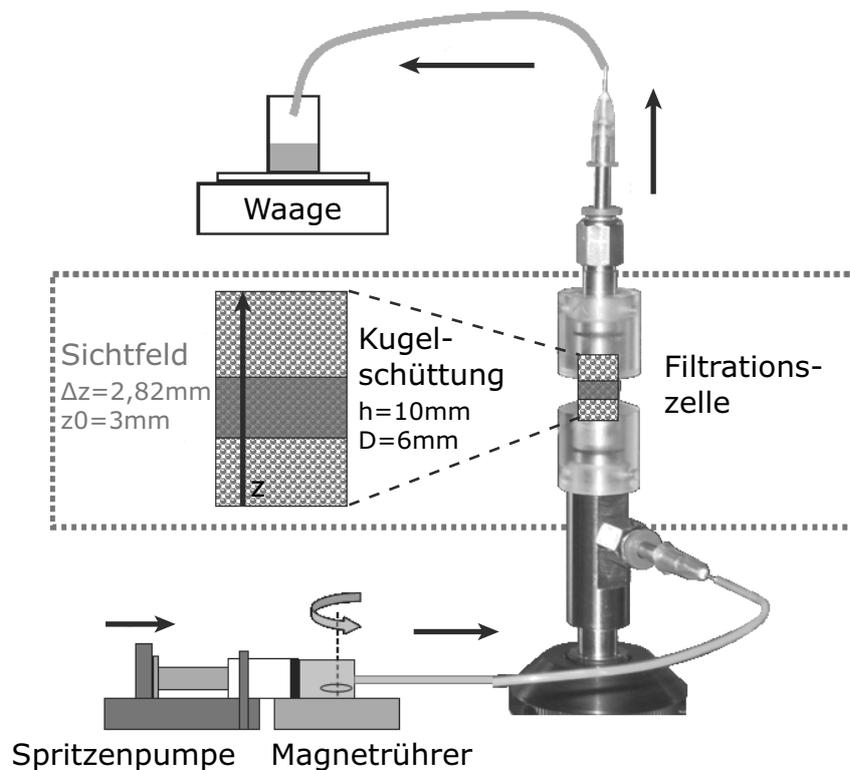


Abbildung 4.8: Aufbau des Filtrations-Experiments mit Fördereinheit, Zelle und Kontrollwaage, die jeweils mit einem Schlauch verbunden sind.

Substanz	Menge	Konzentration in fertiger Suspension
Partikelsuspension	1,235 ml	1235 ppm Feststoffvolumen
destilliertes Wasser	48,265 ml	/
0,1 M KCl-Lösung	0,5 ml	0,001 M
Gesamte Suspension	50 ml	/

Tabelle 4.3: Zusammensetzung der Partikelsuspension

Leitfähigkeit zu $\sigma = 0,148 \mu\text{Scm}^{-1}$. Anschließend wurden etwa 20 ml (Experiment 1) bzw. 45 ml (Experiment 2) der Suspension in die Spritze gefüllt, welche danach auf dem Magnetrührer platziert wurde. Zunächst wurde untersucht, ob sich die Filtrationszelle bzw. die Suspension unter Einfluss des Synchrotronstrahls erwärmt. Dazu wurde mit Hilfe eines Thermoelements die Temperatur in der dem Strahl ausgesetzten und mit der Suspension gefluteten Zelle gemessen. Die Temperatur bewegte sich innerhalb von ca. einer Stunde Messzeit in einem Temperaturintervall von $T = 23 \text{ }^\circ\text{C} \pm 0,5 \text{ K}$, was eine hinreichend gute Temperaturstabilität für das Experiment ist. Die Stärke der Wechselwirkung von Partikeln und Glaskugeln kann durch Zugabe von Elektrolyten zur Suspension eingestellt werden. Wie in Abbildung 4.9 zu sehen, sinkt der Betrag des Zetapotentials einer Oberfläche, wenn man die Elektrolytkonzentration in der Suspension erhöht. Dies hat im vorliegenden Experiment den Zweck, die Energiebarriere zwischen Glaskugeln und Silberpartikeln zu verringern. Die abstoßenden Kräfte sollen verringert, aber nicht ausgelöscht werden, damit einerseits genug Partikel abgeschieden werden, aber andererseits die Annahme abstoßender Wechselwirkung erfüllt ist.

Die Silberpartikel besitzen laut Herstellerangaben eine schwache negative Oberflächenladung, d.h. es kann bei ebenfalls negativer Oberflächenladung der Glaskugeln von einer leicht abstoßenden Wirkung ausgegangen werden. Eine Messung des Zetapotentials der Partikel in der Suspension ergab $\zeta = -20,61 \text{ mV}$, mit einer maximalen Abweichung vom Mittelwert von $\delta\zeta = 2,85 \text{ mV}$ bei drei sukzessiven Messungen.

Die Abscheidung der Kolloide in oben beschriebener Kugelschüttung soll unter definierten, zeitlich konstanten Strömungsbedingungen erfolgen. Das bedeutet, dass sich die lokalen Geschwindigkeiten während der Filtration nicht verändern sollen. Dies kann durch Einstellen eines konstanten Volumenstroms erfolgen, wenn man davon ausgeht, dass die Ablagerungen die lokale Porosität nur unwesentlich verändern. Der konstante Volumenstrom wurde in diesem Experiment durch das kontrollierte Auspressen einer Spritze mit Hilfe einer Spritzenpumpe (KD Scientific 100) gewährleistet (siehe Abbildung 4.8). In der Spritze befindet sich die Partikelsuspension.

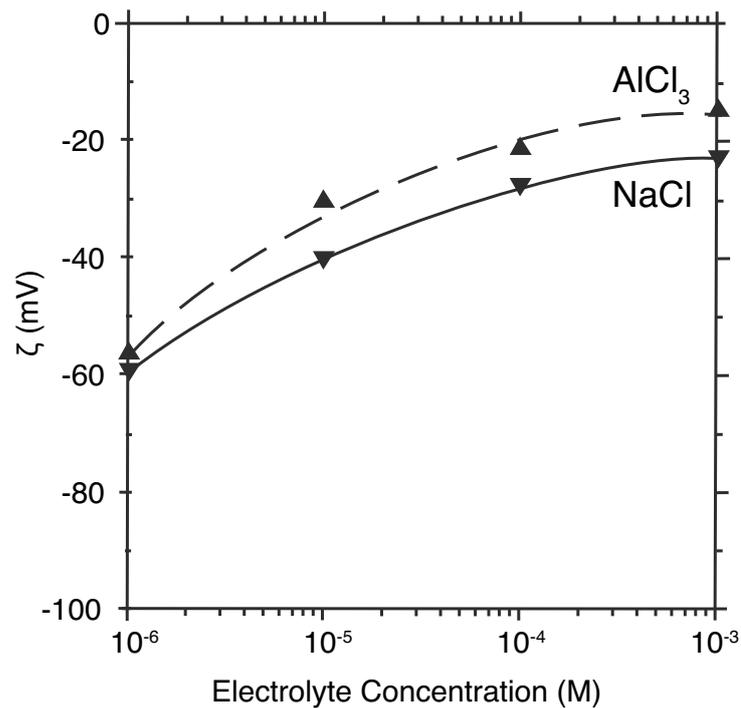


Abbildung 4.9: Einfluss von Elektrolytzugabe auf das Zetapotential einer Glasoberfläche in wässriger Suspension. Aus [71].

sion zusammen mit dem Dauermagneten eines Magnetrührers, der durch ständiges Rühren die Partikel während des gesamten Experimentes suspendiert hält. Der Volumenstrom wurde auf einen konstanten Wert gesetzt, dies entspricht einer konstanten Leerrohrgeschwindigkeit in der Filterzelle. Die Strömungsrichtung ist der Richtung der Gravitationskraft entgegen gerichtet, um die initiale Verdrängung der Luft in der Packung durch das Wasser zu unterstützen. Der Volumenstrom wurde zusätzlich mit einer digitalen Waage (Sartorius TE1502S) überwacht, um einen Einfluss der Ablagerungen auf den Volumenstrom auszuschließen. Nach Beenden der Filtration bzw. des Suspensionsstroms wurde ein Absperrventil am unteren Ende der Zelle geschlossen und anschließend die Packung und die in ihr anhaftenden Partikel tomographiert.

Den während der Filtration herrschenden Strömungszustand kann man durch die sogenannte Partikel-Reynoldsnummer [23] charakterisieren. Sie wird folgendermaßen ermittelt:

$$Re = \frac{w_F^0 \rho d_P}{\varepsilon \eta} \quad (4.1)$$

wobei w_F^0 die Leerrohrgeschwindigkeit, d_P der Kugeldurchmesser, ε die Porosität der Packung, η die dynamische Viskosität und ρ_F die Dichte des Fluids. Die sehr kleinen Partikel-Reynoldszahlen der durchgeführten Experimente sind in der Größenord-

nung von typischen Reynoldszahlen von natürlich vorkommenden Filterprozessen im Boden. In Tabelle 4.4 sind die Strömungsbedingungen der hier betrachteten Experimente aufgelistet. In Experiment 1 ist die Filtrationsgeschwindigkeit höher als in Experiment 2, während das Volumen filtrierter Suspension kleiner ist als in Experiment 2.

Im folgenden sollen einige für die Einordnung der Experimentbedingungen wichtigen Abschätzungen durchgeführt werden. Als erstes soll untersucht werden, welchen Einfluss die Sedimentation auf den Partikeltransport hat. Dazu soll die rechnerische Sedimentationsgeschwindigkeit mit dem mittleren Porendurchmesser verglichen werden, um abzuschätzen, in welchen Zeitraum nach dem Anhalten der Filtration noch mit Partikelbewegungen aufgrund von Sedimentation und damit mit Bewegungsartefakten im Tomogramm gerechnet werden muss. Andererseits ist es wichtig, dass die Leerrohrgeschwindigkeit während der Filtration deutlich größer gewählt ist als die Sedimentationsgeschwindigkeit, damit überhaupt ein Partikeltransport entgegen der Gravitation stattfindet. Danach soll durch Berechnen der erwarteten typischen Größe der thermischen (Brown'schen) Bewegung abgeschätzt werden, ob dieser Antransportmechanismus für das betrachtete Experiment maßgeblich ist.

Für die Abschätzung der Sedimentation muss man zunächst die mittlere Dichte des aus zwei Materialien aufgebauten Partikels berechnen. Die sphärischen Partikel besitzen einen Nenndurchmesser von $d_{Nenn} = 9,81 \mu m$, wobei die Silberbeschichtung etwa $\Delta d_{Ag} = 100 nm$ dick ist. Die mittlere Dichte der Partikel kann man aus den Dichten von Silber (ρ_{Ag}) und Polystyrol (ρ_{PS}) und den jeweiligen Volumina (V_{Ag}, V_{PS}) wie folgt berechnen:

$$\bar{\rho} = \frac{V_{Ag} \rho_{Ag} + V_{PS} \rho_{PS}}{V_{Ag} + V_{PS}} \quad (4.2)$$

Das Volumen der Silberschicht ist die Differenz zwischen dem Nennvolumen und dem Polystyrolanteil:

Größe	Experiment 1	Experiment 2
Leerrohrgeschwindigkeit w_F^0	$4 mh^{-1}$	$2 mh^{-1}$
Partikel-Reynoldszahl	0.76	0.37
filtriertes Gesamtvolumen	10 ml	35 ml
Volumenstrom	$1,88 ml min^{-1}$	$0,94 ml min^{-1}$
Filtrationsdauer	5 min 18 s	37 min 17 s

Tabelle 4.4: Parameter der Filtrations-Experimente

$$V_{Ag} = V_{Nenn} - V_{PS} \quad (4.3)$$

Setzt man dies in Gleichung 4.2 ein ergibt dies, zusammen mit der Volumenformel einer Kugel:

$$\bar{\rho} = \left[\frac{d_{PS}}{d_{Nenn}} \right]^3 (\rho_{PS} - \rho_{Ag}) + \rho_{Ag} \quad (4.4)$$

Setzt man den oben angegebenen Wert für den Nenndurchmesser, sowie die Dichten von Silber ($\rho_{Ag} = 10,49 \text{ g cm}^{-3}$) und Polystyrol ($\rho_{PS} = 1,05 \text{ g cm}^{-3}$) in Gleichung 4.4 ein, erhält man eine mittlere Dichte von $\bar{\rho} = 1,58 \text{ g cm}^{-3}$. Die Sedimentationsgeschwindigkeit in der ruhenden Suspension lässt sich nun mit der Stokesschen Gleichung leicht abschätzen. Dieser liegt die Stokessche Abschätzung für die Reibungskräfte, die an einem sphärischen Partikel in einem Fluid auftreten, zugrunde. Die Sedimentationsgeschwindigkeit v_{Sed} ist demnach:

$$v_{Sed} = \frac{2r^2g(\bar{\rho} - \rho_F)}{9\eta} \quad (4.5)$$

Mit den Fluidgrößen für Wasser ($\eta = 1 \text{ mPa s}$, $\rho = 1 \text{ g cm}^{-3}$) und der Fallbeschleunigung ($g = 9,81 \text{ ms}^{-2}$) errechnet sich die mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit v_{Sed} der mit Silber beschichteten Polystyrolpartikel in Wasser zu:

$$v_{Sed} = 30,23 \text{ } \mu\text{m s}^{-1} \quad (4.6)$$

Um abzuschätzen, wie lange sich die Partikel nach Anhalten der Filtration noch bewegen, wird angenommen, dass sie sich mit der mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit durch einen typischen Porenraum bewegen. Für eine typische, idealisierte Pore in einer Packung gleichgroßer Kugeln kann man einen Minstdurchmesser d_{min} angeben. Wie man in Abbildung 4.10 zu sehen, gilt:

$$\frac{d_K}{2} + \frac{d_{min}}{2} = \frac{2}{3}H \quad (4.7)$$

sowie

$$H = D \sin 60^\circ = D \frac{\sqrt{3}}{2} \quad (4.8)$$

So erhält man durch Umstellen von Gleichung 4.7 nach d_{min} und Einsetzen der nach H umgestellten Gleichung 4.8 die folgende Abschätzung für den Minstdurchmesser einer durchschnittlichen Pore:

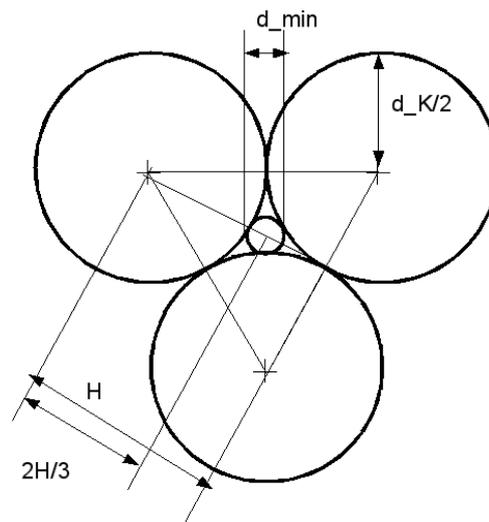


Abbildung 4.10: Ermittlung eines typischen Porendurchmessers für eine idealisierte Anordnung dreier Filterkugeln.

$$d_{min} = \left[\frac{2}{\sqrt{3}} - 1 \right] D \quad (4.9)$$

Eine Packung aus Kugeln mit einem mittleren Kugeldurchmesser von $d_K = 275 \mu m$ hat demnach einen Mindest-Porendurchmesser von $d_{min} = 42,6 \mu m$ (siehe Abbildung 4.10). Nachdem die Filtration angehalten wurde, wird diese Pore von einem Partikel mit der Sinkgeschwindigkeit von $v_{Sed} = 30,23 \mu m s^{-1}$ in ca. 1,4 Sekunden durchquert. Dies bedeutet, dass beim Start des Tomographiescans mit großer Sicherheit alle Partikel, die sich im Porenraum befanden, bereits sedimentiert sind, da zwischen Ende der Filtration und Start des Scans einige Minuten liegen. Die im Experiment eingestellten Leerrohrgeschwindigkeiten betragen $w_F^0 = 4 ms^{-1}$ (Experiment 1) bzw. $w_F^0 = 2 ms^{-1}$ (Experiment 2). Diese sind somit viele Größenordnungen höher als die Sedimentationsgeschwindigkeit ($v_{Sed} = 30,23 \mu m s^{-1}$). Der Netto-Transport der Partikel durch den Filter wird also während der Filtration durch Sedimentation nicht nennenswert behindert.

Kennt man die mittlere Zeit, die vom Kolloid für die Durchquerung einer Pore benötigt wird, kann man die mittlere Abweichung senkrecht zur Transportrichtung berechnen, die aufgrund der thermischen Bewegung der Partikel entsteht (vgl. Gleichung 3.2). Aus dieser theoretischen Transportdistanz kann man abschätzen, ob die Diffusion in dem hier vorgestellten Experiment ein wichtiger Antransportmechanismus ist. Für die Parameter des hier beschriebenen Experiments ($T = 296 K$, $r = 5 \mu m$, $\eta = 1 mPas$) erhält man eine mittlere Verschiebung von

$$\langle \sigma^2 \rangle = 0,721 \mu m, \quad (4.10)$$

Das ist weniger als ein Zehntel des Partikeldurchmessers. Daher werden diffusive Effekte einen eher geringen Einfluss auf den Antransport eines Partikels an die Oberfläche haben.

Die Abschätzungen der Antransportmechanismen der Partikel zeigen, dass diffusive Effekte für die Abscheidung kaum eine Rolle spielen. Die Sedimentation hingegen ist zwar im ruhenden System beträchtlich; sie sollte aber aufgrund der vergleichsweise hohen Filtergeschwindigkeiten, die zudem der Gravitation entgegen gerichtet sind, für den Antransport während der Filtration keine Rolle spielen. Trägheitskräfte als Antransportmechanismus scheinen wegen der guten Dichteanpassung ($\rho_{Wasser} = 1 \text{ g cm}^{-3}$, $\bar{\rho}_{Partikel} = 1,58 \text{ g cm}^{-3}$) und der geringen Filtergeschwindigkeiten unwahrscheinlich. Für die Betrachtung möglicher hydrodynamischer Kraftwirkungen existieren aufgrund der nur spärlich dokumentierten Beobachtungen dieses Phänomens in der Literatur keine Abschätzungen. Hinzu kommt, dass es sich bei hydrodynamischen Anlagerungen häufig um temporäre Zustände handelt, die bei einer Veränderung des Strömungsfeldes kollabieren. Dies bedeutet, dass von den in Abschnitt 3.2.1 vorgestellten Antransportmechanismen vor allem der durch Abfangen (Interception) in Betracht kommt. Durch die im Vergleich zur mittleren Porengröße ($d_{min} = 42,6 \text{ }\mu\text{m}$) kleinen Partikel ($d_p = 9,81 \text{ }\mu\text{m}$) kommt als weiterer plausibler Filtrationsmechanismus das Festklemmen von Partikeln in der Nähe von Kugel-Kugel-Kontakten infrage. Dieser Mechanismus wird in der Fachliteratur als *Wedging* bezeichnet.

5 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt. Die betrachteten tomographischen Bilddaten wurden dabei mit Hilfe von Synchrotronstrahlung erzeugt. Von den beiden durchgeführten Experimenten werden zunächst die Tomogramme der Kugelschüttungen hinsichtlich Kugelgrößen und -position ausgewertet. Danach werden die Kolloidabscheidungen auf ihre axiale und radiale Verteilung, sowie ihre Winkelposition in der tomographischen Ebene untersucht. Als zentrales Ergebnis der Arbeit wird anschließend die Zuordnung der einzelnen Abscheidungsorte zu einem einzelnen Kollektor vorgestellt und die daraus berechnete Winkelverteilung der Kolloide diskutiert. Diese Verteilung wird anschließend mit der Verteilung der Kugel-Kugel-Kontakte verglichen und ein Zusammenhang zwischen den Ablagerungsorten der Kolloide und den Kugel-Kugel-Kontakten postuliert. Zuerst sollen aber kurz die Bildverarbeitungsschritte der Tomogramme dargestellt werden, die der Auswertung vorausgehen.

5.1 Bildverarbeitung der Tomogramme

Der Aufbau des Filtrationsexperimentes, sowie die Verfahrensweise und die Parameter der Bildaufnahme wurden bereits in Kapitel 4 beschrieben. Auf das prinzipielle Vorgehen bei der Bildanalyse wurde in Abschnitt 1.2 eingegangen. An dieser Stelle sollen daher die konkreten Bildverarbeitungsschritte bei der Auswertung der Bilddaten der Filtration erläutert werden. Wie bereits gezeigt, gehören zu einem Filtrationsexperiment *zwei* Tomogramme (vgl. Abb. 4.5), aus deren Differenzbild die Partikelorte bestimmt werden, indem nur Beiträge größer Null zugelassen werden. Das in dieser Weise binarisierte Bild wird mithilfe des Programms Dip-Image analysiert, wobei in diesem Fall die Zentrumskoordinaten, d.h. der geometrische Schwerpunkt und die Größe der einzelnen Abscheidungen sowie deren Oberfläche ermittelt wird. Die ermittelten kartesischen Bildkoordinaten werden anschließend in Zylinderkoordinaten transformiert, die der Zylindergeometrie des Filters entsprechen. Die z-Achse zeigt in Durchströmungsrichtung; der Koordinatenursprung ist in der Mitte der Schüttung, so dass der Zylinderradius dem Filterradius entspricht.

Die Binarisierung der Schüttung gestaltet sich etwas schwieriger, da in diesem Fall kein eindeutiges Kriterium existiert, anhand dessen man entscheiden kann, ob ein Pixel zur Schüttung gehört oder nicht. Im Fall der Kugelschüttung verhält es sich so,

dass diese aus einem Datensatz extrahiert werden muss, in dem gleichzeitig auch Wasser und, in geringem Umfang, Luft auftreten. Daher muss man den Schwellwert erst aus den vorhandenen Daten bestimmen; in diesem Fall wurde dafür die Methode des Isodata-Algorithmus [72] gewählt. Durch Streifenartefakte, die innerhalb der Kugeln auftauchen erzeugt die Binarisierung jedoch auch falsche positive Beiträge, die eine Fehlerquelle für die anschließende Trennung der Einzelkugeln sind. Daher muss eine Methode gefunden werden, wie man diese falschen Beiträge wieder abziehen kann. Geeignet ist in diesem Fall eine Maske, die die inneren Bereiche der Kugeln überdeckt. Eine solche Maske erzeugt man, indem man das binarisierte Bild zunächst erodiert, so dass lediglich noch Bereiche um die Mittelpunkte der Kugeln übrig bleiben. Danach werden diese Bereiche wieder dilatiert, so dass sie auf eine Größe anwachsen, die in etwa die Größe der Artefaktbereiche haben. Die so erzeugte Maske zieht man vom Ursprungsbild ab, was zu einer deutlichen Reduktion der Artefakte führt. Danach wird mittels Watershed-Algorithmus die Trennung der Einzelkugeln vorgenommen. Die so erhaltenen Kugeln werden nummeriert und vermessen.

Für die Auswertung des Schüttbettes ist das Vorliegen voneinander getrennter Einzelkugeln im digitalen, dreidimensionalen Tomogramm nötig. Im beobachteten Schüttungsbereich gibt es jedoch einige Kugelpaare, die nicht korrekt getrennt wurden und daher als *ein* Objekt auftreten. Diese Kugelpaare kann man jedoch leicht anhand ihrer ungewöhnlichen Größe bei gleichzeitig stark von einer Kugel abweichenden *Zirkularität* identifizieren. Für dreidimensionale Objekte berechnet man die Zirkularität als Funktion von Oberfläche A und Volumen V der Kugeln folgendermaßen:

$$Circ = \frac{A^{\frac{3}{2}}}{6\sqrt{\pi} V} \quad (5.1)$$

Für eine Kugel setzt man in Formel 5.1 für die Oberfläche $A = 4\pi r^2$ ein, und drückt dabei den Radius r als Funktion des Volumens aus, indem man die Volumenformel einer Kugel

$$V = \frac{4}{3}\pi r^3 \quad (5.2)$$

nach r umstellt:

$$r = \left(\frac{3V}{4\pi}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (5.3)$$

Damit ergibt sich für die Zirkularität einer Kugel:

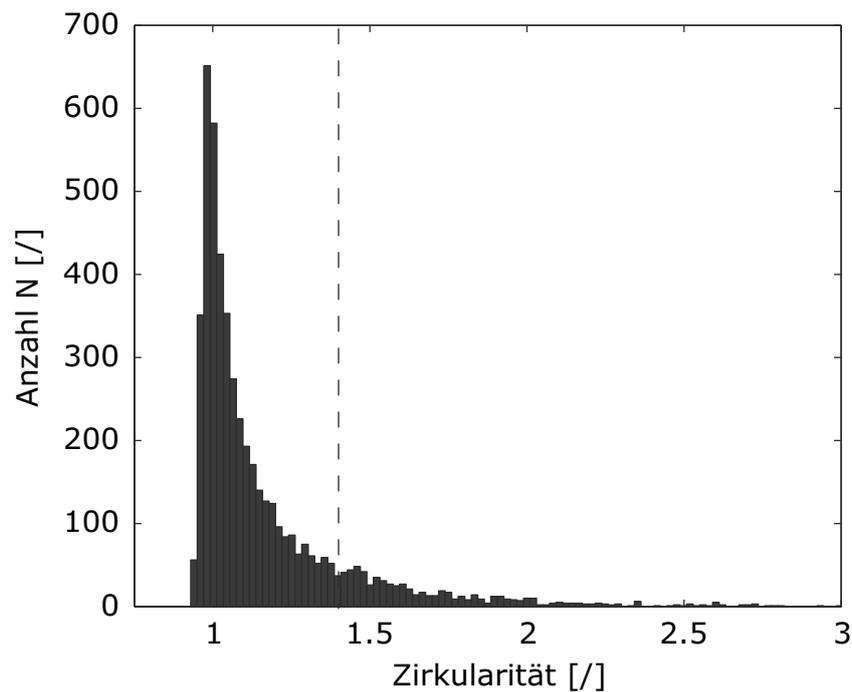


Abbildung 5.1: Zirkularitätsverteilung aller identifizierten Kugeln. Zum nachträglichen Ausschließen zusammenhängender Kugeln wurden solche mit einer Zirkularität größer 1,41 vernachlässigt (Erläuterung im Text).

$$Circ = \frac{\left[4\pi \left(\frac{3V}{4\pi} \right)^{\frac{2}{3}} \right]^{\frac{3}{2}}}{6\sqrt{\pi} V} = 1 \quad (5.4)$$

Eine Kugel besitzt also eine Zirkularität von 1. Stellt man analoge Berechnungen für andere dreidimensionale Körper an, erhält man Zirkularitäten größer 1. Einige Beispiele sind in Tabelle 5.1 aufgelistet.

Um nun noch nicht getrennten Kugelpaare in der Packung zu identifizieren, wurde angenommen, dass diese größer sind als das vom Hersteller angegeben ($d_K >$

Körper	Zirkularität
Kugel	1
Ikosaeder	1,10
Oktaeder	1,29
zwei zusammenhängende Kugeln	1,41
Tetraeder	1,82

Tabelle 5.1: Zirkularitäten verschiedener Körper

300 μm) und zusätzlich eine Zirkularität besitzen, die größer oder gleich der Zirkularität eines Kugelpaares ist. Betrachtet man zwei (ideale) Kugeln, die in einem Punkt miteinander verbunden sind, errechnet sich die Zirkularität wie oben, jedoch mit im Vergleich zur Einzelkugel doppelt so großem Volumen und Oberfläche des Objekts. Damit errechnet sich eine Zirkularität von $Circ = 1,41$. Diese wurde als Grenzwert bestimmt, um zusammenhängende Kugeln von einzelnen Kugeln zu unterscheiden. Der Anteil großer Kugeln, die sehr wahrscheinlich zusammenhängen, an der Gesamtzahl der Schüttungskugeln beträgt bei beiden betrachteten Schüttbetten weniger als 2,5 %. In Abbildung 5.1 ist die Verteilung der Zirkularität aller identifizierten Kugeln eingetragen, zusammen mit dem Schwellwert $Circ = 1,41$.

5.2 Untersuchungen des Schüttbettes

In den Abbildungen 5.2 und 5.3 sind gerenderte Tomogramme der im Filtrationsexperiment 1 genutzten Kugelschüttung zu sehen. Die dargestellten Filterkugeln zeigen nur einen Teil der verwendeten Schüttung, da der Abbildungsbereich durch die Röntgenstrahlgröße beschränkt war. Daher sieht man in den Renderings angeschnittene Kugeln; diese sind aber lediglich Kugeln, die nur teilweise abgebildet wurden. Wandordnungseffekte sind deutlich sichtbar: an der Wand der Filterzelle liegt eine stark geordnete Kugelkonfiguration mit hexagonalen Mustern vor (Abbildung 5.2). Es ergibt sich eine Anordnung schräg verlaufender Reihen. Abweichungen ergeben sich einerseits durch Packungsfehler, so dass zusätzliche Lücken entstehen, andererseits durch von der Idealform abweichende Einzelkugeln. Insgesamt sind diese Abweichungen aber gering, so dass sie die homogen aufgebaute Packung nicht dominieren.

Im folgenden werden nun die Eigenschaften der in Experiment 1 verwendeten Schüttung vorgestellt. Die Eigenschaften der Schüttung aus Experiment 2 sind sehr ähnlich, so dass auf eine separate Darstellung verzichtet wird. Zunächst wird die Verteilung des Äquivalentdurchmessers der Filterkugeln ermittelt, indem das gemessene Volumen des Körpers als Kugel interpretiert und deren Durchmesser errechnet wird. Diese Verteilung ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Vom Hersteller der Präzisionskugeln wurde angegeben, dass die Durchmesser der Kugeln im Bereich $d_K = 250 - 300 \mu\text{m}$ liegen. Tatsächlich hat auch die überwiegende Menge der Kugeln einen solchen Durchmesser, doch gibt es auch Verunreinigungen der gelieferten Kugeln durch kleinere Kugeln bis $d_K = 80 \mu\text{m}$ und größere bis $d_K = 450 \mu\text{m}$. Der gesamte Anteil der Kugeln abweichender Größe am Gesamtvolumen der Kugeln beträgt 15,7 Vol% in Experiment 1 und 20,4 Vol% in Experiment 2. Die Verunreinigungen zeigen ein schwaches lokales Maximum bei $d_K = 180 \mu\text{m}$. Da Kugelschüt-

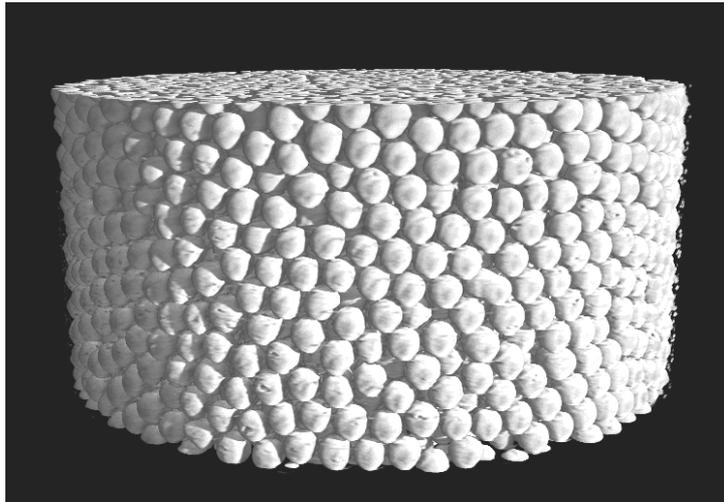


Abbildung 5.2: Rendering der leeren Filterschüttung von Experiment 1. Deutlich sind hexagonale Anordnungen von Wandkugeln zu sehen, die auf eine hohe lokale Ordnung hinweisen. Die Form der Objekte weicht zum Teil von der sphärischen Idealform ab, man erkennt Unebenheiten auf der Kugeloberfläche und zum Teil deformierte, längliche Objekte.

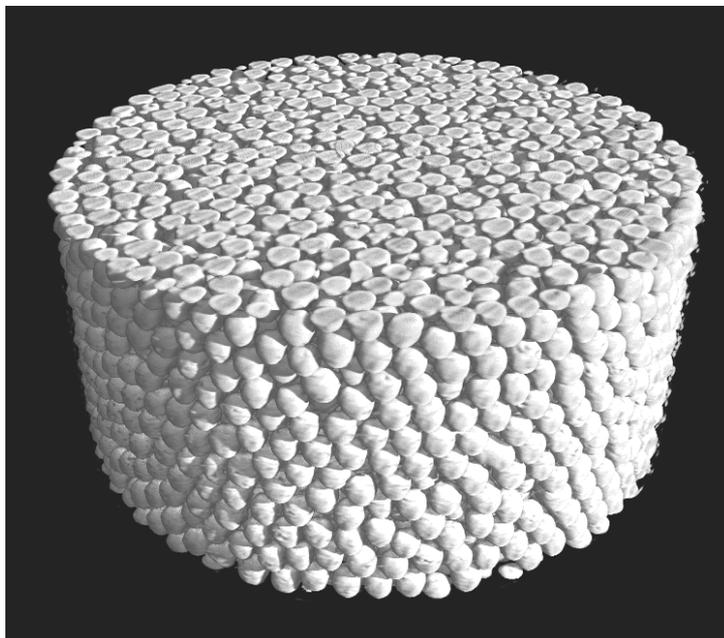


Abbildung 5.3: Ansicht der Filterschüttung von schräg oben: im Querschnitt des Filters kann man die schichtweise Anordnung zumindest der ersten Lage von Filterkugeln in der Nähe der Wand der Filterzelle gut beobachten.

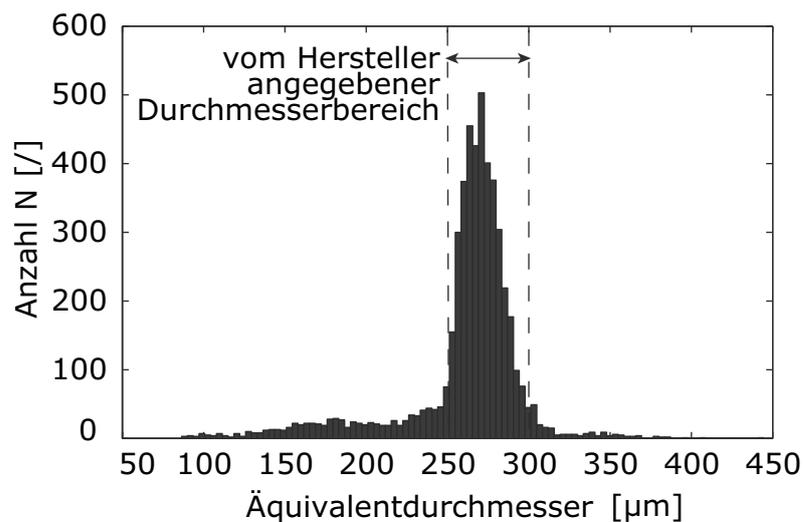


Abbildung 5.4: Verteilung der Äquivalentdurchmesser der Schüttungskugeln der in Experiment 1 benutzten Kugelschüttung. Die überwiegende Menge der Kugeln hat, wie vom Hersteller angegeben, Durchmesser im Bereich $d_K = 250 - 300 \mu\text{m}$.

tungen in der Regel durch Siebung klassiert werden, wobei die zu kleinen Kugeln ausgesiebt werden, hat hier vermutlich eine zu geringe Durchmischung der Kugel-Rohware stattgefunden, so dass kleinere Kugeln in der Menge zurückgehalten wurden.

Für Informationen über die lokale Ordnung sind die *Positionen der Kugeln* von höchstem Interesse. In Abbildung 5.5 sind die Mittelpunktspalten der Kugeln bezüglich des Schüttbettradius und der Höhe z eingezeichnet. Man erkennt, dass sich in Wandnähe (d.h. bei großen Radien) viele der Mittelpunkte jeweils auf Linien konstanten Radius befinden. Dies ist über die gesamte beobachtete Höhe des Schüttbettes und zumindest für die äußeren zwei bis drei radialen Kugellagen zu sehen. In der Mitte der Packung, dem sogenannten *Bulk* ist keine solche offensichtliche Ordnung auszumachen. Am unteren und oberen Rand des beobachteten Packungsbereichs ist ebenfalls keine Wandordnung zu beobachten, da sich der tomographierte Schüttungsbereich weit entfernt von den physikalischen oberen und unteren Grenzen der Packung befindet. In Abbildung 5.6 sind die Koordinaten der Kugelzentren auf eine Ebene senkrecht zur Filterachse projiziert. Auch in dieser Darstellung kann gut beobachtet werden, dass sich die Kugeln in den äußeren Bereichen der Packung lagenartig anordnen. Darüber hinaus wird bei dieser Auftragsart auch klar, dass im Bulk, in der Mitte des Filters, die Kugeldichte sich nicht verringert, wie es Abbildung 5.5 suggerieren könnte. Die Kugeln sind im Inneren des Filters zufällig, aber gleichmäßig verteilt. Wie bereits in Abschnitt 2.2.2 ausgeführt, hängt die Positionsverteilung der Schüttungskugeln unmittelbar mit der

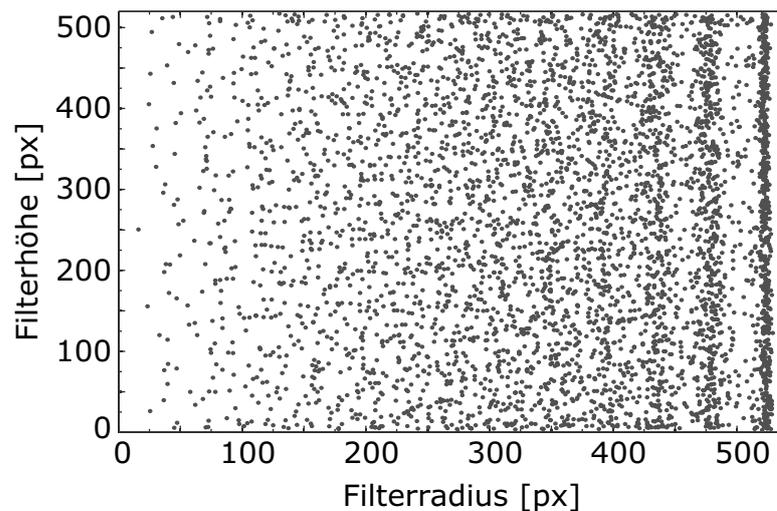


Abbildung 5.5: Typische Positionen der Mittelpunkte der Schüttungskugeln bezüglich Radius und Höhe des Filterbettes. Deutlich ist zu erkennen, dass sich die Kugelmittelpunkte in Wandnähe, d.h. bei großen Radien, an definierten Radien häufen. Dies ist ein Ausdruck der Ordnung, die durch die Wand der Filterzelle auf die Packung aufgeprägt wird.

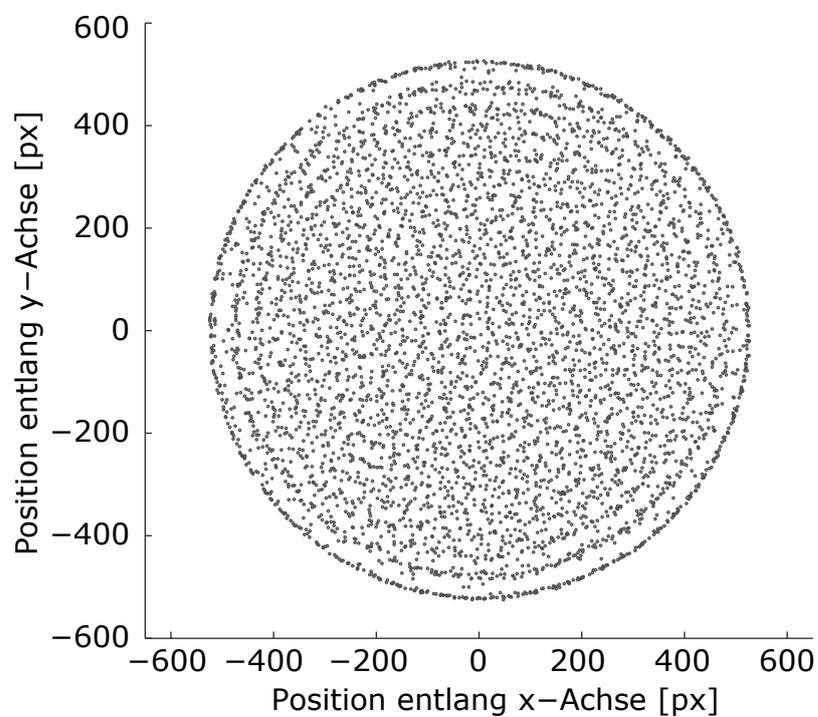


Abbildung 5.6: Projektion der Kugelzentren auf den Filterquerschnitt, wobei (0;0) mit der Mittelachse des Filters zusammenfällt. Auch in dieser Darstellungsvariante ist der Einfluss der Wandordnung zu erkennen.

lokalen Porosität der Schüttung zusammen. Durch die räumliche Anordnung der Kugeln entstehen, wenn das Integrationsgebiet klein genug ist, lokal schwankende Porositäten. Im selben Abschnitt ist dargestellt, wie aus den Tomogrammschichten durch Mittelung der Bildintensitäten auf einem Kreisumfang direkt die lokale Porosität extrahiert wird. Diese innerhalb eines gewissen Abstandes von der Wand oszillierende Größe ist wichtig für die Interpretation der radialen Partikelabscheidung in Schüttbetten (vgl. Abschnitt 5.3.2).

5.3 Integrale Untersuchung der Partikelabscheidungen

In diesem und im folgenden Abschnitt werden die Partikelabscheidungen im Filter mikroskopisch untersucht. Dabei wird zunächst eine integrale Betrachtung durchgeführt, d.h. das Partikelsignal wird über geeignete Flächen *gemittelt*. Die Mittlung erfolgt innerhalb tomographischer Ebenen um axiale, d.h. in Filterrichtung verlaufende Konzentrationsprofile zu erhalten bzw. auf Zylindermänteln, um radiale Konzentrationsprofile zu gewinnen. Auf diese Art und Weise kann das Abscheideverhalten über dem gesamten Filter betrachtet werden. Integrale Ergebnisse der Partikelabscheidung sind nützlich, um auf Aussagen über das Abscheideverhalten des Filters gewinnen zu können, ohne auf die Analyse einzelner Partikelcluster zurückgreifen zu müssen.

5.3.1 Axiale Konzentrationsprofile

Unter der axialen Verteilung der Kolloidabscheidungen versteht man die Konzentration der entlang der Filtrationsrichtung abgeschiedenen Partikel. Die in der vorliegenden Arbeit gewonnenen axialen Konzentrationsprofile sind in Abbildung 5.7 (Experiment 1) und in Abbildung 5.8 (Experiment 2) dargestellt. Mit Hilfe der Software ImageJ wurde dazu der Anteil der weißen Pixel - welche Partikelabscheidungen entsprechen - an der Gesamtzahl der Pixel in einer Tomogrammschicht ermittelt und mit dem Grauwert für weiß (255) multipliziert. Dabei wird für die beiden untersuchten Leerrohrgeschwindigkeiten ein Konzentrationsprofil mit lokalem Maximum beobachtet. Im beobachteten Filtersegment steigt die Konzentration mit der Filterlänge zunächst für etwa ein Drittel der beobachteten Filterlänge an, erreicht einen Maximalwert und hält diesen für etwa zwei Kugellagen. Während der zweiten Hälfte des beobachteten Filtersegmentes fällt die Partikelkonzentration bis auf einen Wert ab, der etwa halb so groß ist wie in der ersten beobachteten Tomogrammschicht.

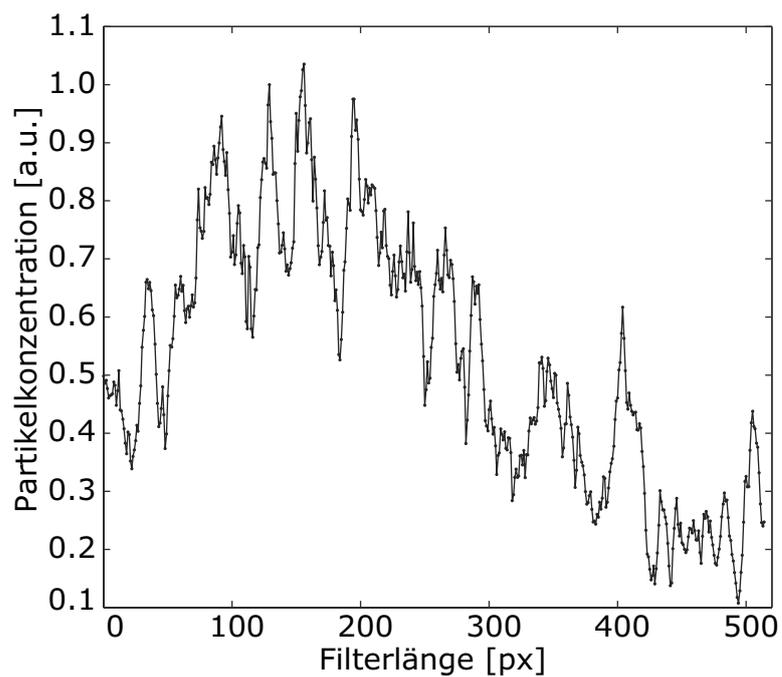


Abbildung 5.7: Axialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 1. Zum Vergleich ist der Verlauf der axialen Porosität der Schüttung aufgetragen.

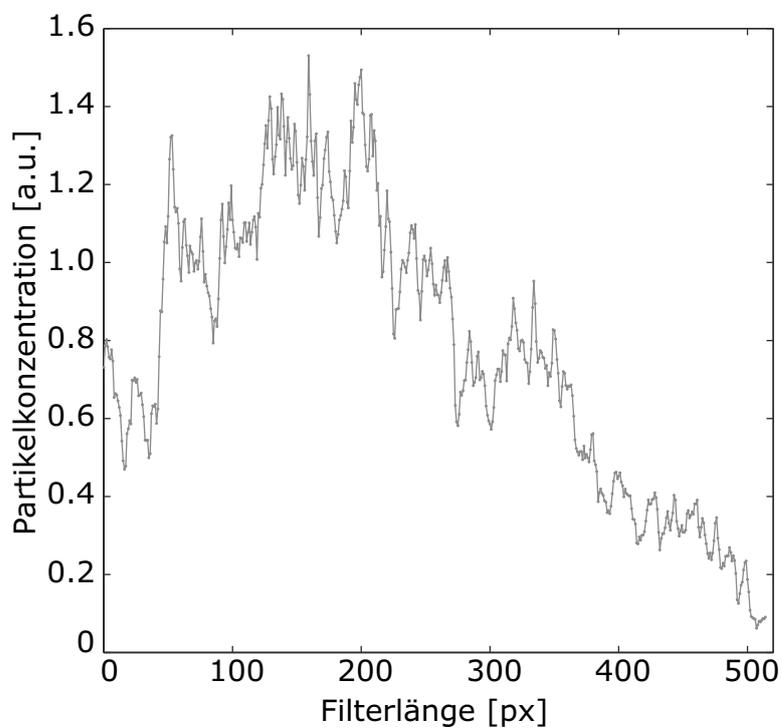


Abbildung 5.8: Axialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 2. Zum Vergleich ist der Verlauf der axialen Porosität der Schüttung aufgetragen.

Der qualitative Verlauf der Konzentrationen ist für beide Leerrohrgeschwindigkeiten ähnlich, wobei jedoch bei der niedrigeren Geschwindigkeit (Experiment 2) ein stärker ausgeprägtes Maximum beobachtet wird. Die Anfangs- und Endwerte der Konzentration (Tomogrammschicht 1 bzw 515) sind dagegen nahezu identisch. Zu beachten ist, dass insgesamt die Konzentrationswerte von Tomogrammschicht zu Tomogrammschicht schwanken, nämlich um eine Amplitude von etwa der Hälfte des Wertes der ersten Tomogrammschicht im Filter. Der Trend zu einer Maximumsbildung ist jedoch insbesondere für Experiment 2 stärker als diese Schwankung. Das absolute Konzentrationsverhältnis beider Experimente im lokalen Maximum beträgt etwa $\frac{C_{Exp1}}{C_{Exp2}} = \frac{0,32}{0,5} = 0,64$. Im Experiment 1, das eine doppelt so hohe Leerrohrgeschwindigkeit, jedoch weniger als ein Drittel des Suspensionsvolumens aufzuweisen hat, wurde somit im Maximum immerhin 64% der Konzentration von Experiment 2 im Filter aufgefunden.

Die Ergebnisse stellen - dies wurde bereits erwähnt - nur die Partikelkonzentration in einem Teil des gesamten Filterbettes dar. Wie in Kapitel 4 erläutert, wurde von der gesamten Filterhöhe ($z = 12 \text{ mm}$) lediglich der Abschnitt zwischen $z = 3 \text{ mm}$ und $z = 5,82 \text{ mm}$ beobachtet. Wie die Partikelkonzentration vor bzw. hinter diesem Abschnitt ist, ist also nicht bekannt. Es erscheint an dieser Stelle sehr fragwürdig, den konkreten Verlauf des beobachteten Filterabschnitts interpretieren zu wollen, da dieser nur etwa einem Viertel der Schüttbetthöhe entspricht. Auch muss man berücksichtigen, dass die beobachtete Konzentration das Ergebnis eines längeren Experimentes ist. Die Filtrationsdauer betrug ca. 5 Minuten bei Experiment 1 sowie ca. 37 Minuten bei Experiment 2, so dass mit großer Sicherheit auch Ablöse- und Wiederanlagerungsprozesse stattgefunden haben, welche die beobachtete Ablagerungskonzentration beeinflusst haben.

In Abschnitt 3.2 wurde beschrieben, dass die klassische Filtrationstheorie und hier speziell das Modell von Iwasaki eine mit der Filtertiefe monoton abnehmende Partikelkonzentration postuliert. Im Fall anziehender Partikel-Filter-Wechselwirkung wurde dieses Modell vielfach experimentell bestätigt [73]. Mit Hilfe von Röntgentomographie konnte von Al-Abduwani [49] die exponentiell abfallende Konzentration von Hämatitpartikeln über der Filterlänge gezeigt werden. Dabei herrscht im Filter eine starke Anziehung zwischen Partikeln und Filteroberfläche vor.

In der aktuellen Literatur wird davon berichtet, dass bei abstoßender Wechselwirkung zwischen Partikel und Filteroberfläche vom exponentiellen Abfall abweichende Partikelkonzentrationen beobachtet wurden. Dabei wurde sowohl von einem stärker als exponentiell abfallenden Verhalten berichtet [50] als auch von scheinbar regellosen, nichtmonotonen Verläufen [51]. Die im vorgestellten Experiment

beobachteten nichtmonotonen Verläufe sind also mit aus der Literatur bekannten Ergebnissen vereinbar.

5.3.2 Radiale Konzentrationsprofile

Die Radiusposition der abgeschiedenen Partikel gibt Aufschluss darüber, wie weit die Partikel ins Innere des Filters eingedrungen sind und somit auch darüber, wie effizient der gesamte Filterquerschnitt zur Abscheidung genutzt wird. Vor allem aber soll durch den stark ausgeprägten Einfluss der Wandordnung und die damit einhergehende radiale Variation der lokalen Geschwindigkeiten und Volumenströme untersucht werden, unter welchen Bedingungen starke Partikelabscheidungen stattfinden. In den Abbildungen 5.9 und 5.10 ist die radiale Abhängigkeit der Partikelabscheidung in Experiment 1 bzw. 2 aufgetragen. Dabei wurde für jede Tomogrammschicht mithilfe des Programms ImageJ der Anteil der weißen Partikelpixel an der Menge der Gesamtpixel auf einem Mittelpunktskreis errechnet. Dieser Anteil wurde über alle Tomogrammschichten gemittelt. In beiden Experimenten werden große Unterschiede der Partikelabscheidung im Verlauf des Filterradius beobachtet. Der überwiegende Teil der Partikelabscheidungen ist in beiden Experimenten in einem Bereich zu finden, der den äußeren 5 Kugellagen entspricht, während die Abscheidung in der Filtermitte eher gering ist. Eines der auffälligsten Merkmale der Konzentrationskurve beider Experimente ist, dass sie ausgeprägte Oszillationen zeigen, wenn man die Konzentration der Partikel und die Porosität des Schüttbettes vergleicht. Die lokale Porosität gibt an, wie groß der Anteil an Porenraum für einen bestimmten Radius im Mittel ist. Über die Oszillation der lokalen Porosität von Kugelschüttungen in Wandnähe wurde bereits in Abschnitt 2.2.2 berichtet. Die Maxima der Partikelkonzentration treten also nicht losgelöst vom Porositätsverlauf der Schüttung auf, sondern an Stellen, denen man eine charakteristische Porenkonfiguration zuordnen kann. Diese typischen Porenräume sind in Abbildung 5.11 dargestellt und mit Buchstaben gekennzeichnet. Dabei muss man beachten, dass es sich bei diesen Beispielen um Einzelbilder aus dem tomographischen Scan handelt, die keinen Anspruch auf Verallgemeinerung erheben. Es ist lediglich so, dass bei den jeweils in Betracht gezogenen Radien häufig derartige Porenkonfigurationen mit Partikelabscheidungen vorkommen. Porenkonfiguration A ist typischerweise mit Abscheidungen verknüpft, die am Berührungspunkt der äußersten Kugel mit der Wand entstehen. Im radialen Verlauf (vergleiche Abbildungen 5.9 und 5.10) treten diese Abscheidungen bei einem Radius von etwa 550 Pixeln auf. Partikel, die in Porenräumen der Konfiguration B abgeschieden wurden, werden von zwei Kugeloberflächen und dem Berührungspunkt zwischen zwei Kugeln begrenzt.

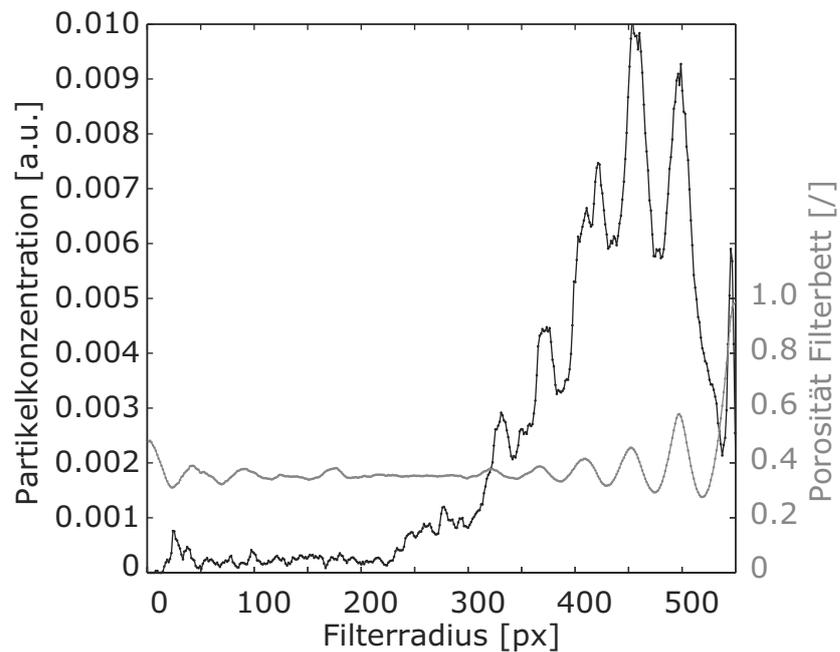


Abbildung 5.9: Radialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 1 (schwarze Punktlinie), verglichen mit dem Verlauf der radialen Porosität der Schüttung (graue Punktlinie).

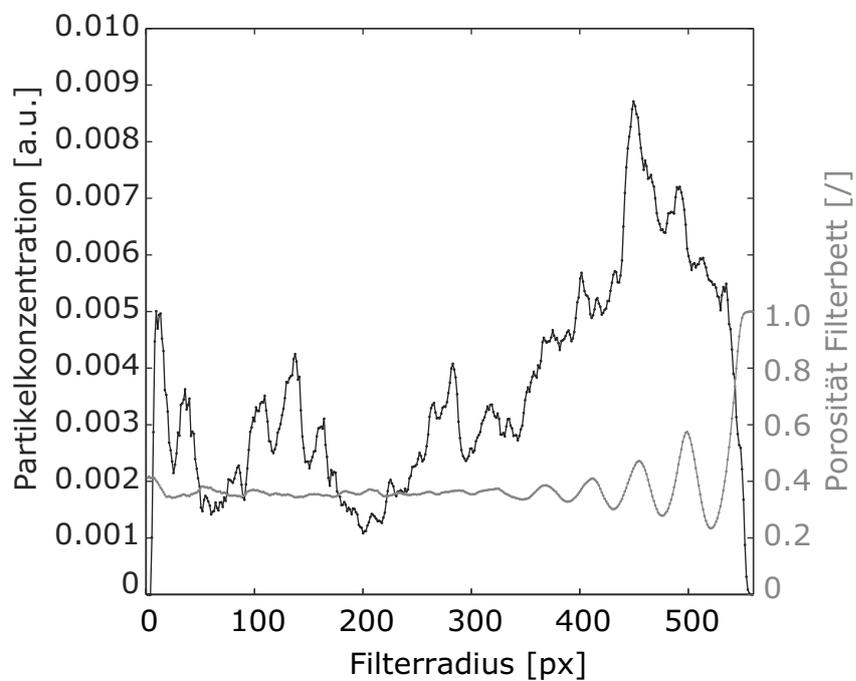


Abbildung 5.10: Radialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 2 (schwarze Punktlinie), verglichen mit dem Verlauf der radialen Porosität der Schüttung (hellgraue Punktlinie).

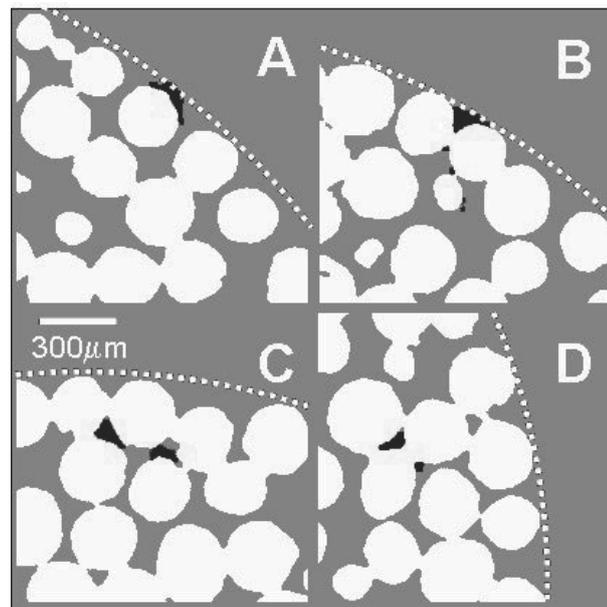


Abbildung 5.11: Tomogrammschnitte der Schüttung (weiß) mit charakteristischen Partikelablagerungen (schwarz). Aus [76].

Die analoge Porencharakteristik tritt nochmals in Abbildung C auf, dann allerdings von diesem Berührungspunkt in Richtung Schüttungszentrum weisenden Kugelflächen. Bild D zeigt eine ähnliche Situation, jedoch noch weiter entfernt vom Rand der Schüttung. Die in den Bildern A-D gezeigten Abscheidungscluster gehören zu den größten in der Packung vorgefundenen Strukturen. Für diese ist es nahezu unmöglich, eine differenziertere Lage anzugeben, da sie durch ihre große Ausdehnung mehreren Oberflächen oder Kugeln zugeordnet werden können. Für kleinere oder Einzelabscheidungen ist diese Zuordnung weniger ambivalent, vergleiche Abschnitt 5.5.

Die Oszillationen der radialen Partikelablagerungen zeigen ferner Übereinstimmungen mit aus der Literatur bekannten, experimentell ermittelten radialen Geschwindigkeitsprofilen [74, 75]. Diese Geschwindigkeitsprofile wurden experimentell einerseits im Inneren einer brechungsindex-angepassten Packung [75], andererseits am Auslauf der Packung ermittelt [74]. In beiden Experimenten wurden starke Oszillationen der radialen Geschwindigkeit und damit des radialen Partikelantransports gemessen. Naheliegend ist daher in diesem Zusammenhang, dass ein lokal hoher Partikelstrom zu starken Ablagerungen führt, in dem er für einen erhöhten Antransport von Partikeln sorgt.

Wenn die Versorgung einzelner Schüttbettbereiche mit Suspension sowie die lokalen Geschwindigkeiten in der Nähe der Filteroberfläche stark schwanken, welche Konsequenzen hat dies für die Ablagerung von Partikeln? Es sind mindestens zwei

verschiedene in Konkurrenz zueinander stehende Wirkungsweisen denkbar:

- Lokal hohe Geschwindigkeiten sind Kennzeichen eines hohen Volumenstroms. Werden große Volumina der Suspension antransportiert, heißt das auch, dass viele Partikel potentiell in Richtung Filteroberfläche gelangen. Bei konstant angenommener Wechselwirkung mit der Oberfläche könnte dies zu einer *erhöhten Anlagerung* führen.
- Lokal hohe Geschwindigkeiten bedeuten, dass es einen großen Geschwindigkeitsgradienten von der Filteroberfläche (Geschwindigkeit = Null) zur Porenmitte (Geschwindigkeit = maximal) gibt. Dieser Geschwindigkeitsgradient stellt für an der Oberfläche haftende Partikel ein Scherfeld dar, durch welches Kräfte auf die Partikel wirken, die es von der Oberfläche abtransportieren. Auf diese Weise wird das *Abtragen* von Partikeln von der Oberfläche begünstigt.

Aus der Literatur ist bekannt, dass durch die Randgängigkeit der Suspension eine Überhöhung der Partikelabscheidung in den ersten Kugellagen stattfindet [77]. Im industriellen Maßstab wird dieser Effekt meist vernachlässigt, da er nur in den äußersten Kugellagen auftritt und diese in einem Industriefilter nur einen sehr geringen Anteil am gesamten Filterdurchmesser haben. Jedoch spricht diese Randablagerung dafür, dass es vor allem der hohe Volumenstrom und damit der im Vergleich zu anderen Filterregionen verstärkte Partikelantransport ist, der diese erzeugt.

5.4 3D-Untersuchung der Partikelabscheidungen

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt integrale Auswertemethoden der Bild-
daten des Filtrationsexperimentes vorgestellt wurden, sollen nun die einzelnen, mittels Bildverarbeitung vermessenen Abscheidungen untersucht werden. Zunächst soll dabei auf die Eigenschaften der Partikelabscheidungen an sich eingegangen werden. Als wichtigstes Einzelergebnis dieser Arbeit soll danach vorgestellt werden, wie den einzelnen Abscheidungen ein Einzelkollektor - also eine Filterkugel - zugeordnet werden kann. Diese Zuordnung ermöglicht die Auswertung der Winkelverteilung von Kolloidabscheidungen an Einzelkollektoren und wird zum Schluss dieses Abschnitts vorgestellt.

5.4.1 Größe der Abscheidungen

Wie bereits mehrfach erwähnt, ist der Durchmesser der im Filtrationsexperiment verwendeten Partikel in der Größenordnung der Pixelgröße im Tomogramm. Das

bedeutet, dass die Partikel im Bild nicht als Einzelkugeln zu erkennen sind. Aussagekräftiger als die Angabe der Größe der Partikelabscheidungen in Pixel^3 oder μm^3 ist daher, aus wie vielen Einzelpartikeln sich rechnerisch eine segmentierte Kolloidabscheidung zusammensetzt. Dazu wurde folgende Abschätzung vorgenommen:

- Ein Einzelpartikel besitzt einen Nenndurchmesser von $d_P = 9,81 \mu\text{m}$. Dies entspricht einem Kugelvolumen von $V_K = \frac{1}{6}\pi d_P^3$.
- Die Kantenlänge eines einzelnen Voxels beträgt $d_V = 5,48 \mu\text{m}$. Dessen Volumen ist also $V_V = d_V^3$.
- Der Quotient aus Kugelvolumen und Voxelvolumen gibt an, wieviele Voxel zur Darstellung eines Einzelpartikels benötigt werden:

$$\frac{V_K}{V_V} = \frac{\frac{1}{6}\pi d_P^3}{d_V^3} = 3,18$$

- Berücksichtigt man nun noch, dass sich die Einzelkugeln in dichter Packung befinden, z.B. hexagonal ($\varepsilon = 0,2592$), so muss dem entsprechenden Volumen einer Einzelkugel noch ein Leerraumvolumen hinzugefügt werden, das sich wie folgt berechnet:

$$\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} = \frac{0,2592}{0,7408} = \frac{V_{\text{Pore}}}{V_K}$$

Das Gesamtvolumen, das für die Ausdehnung eines Einzelpartikels daher berücksichtigt werden muss, beträgt mit der obigen Argumentation 4,29 Voxel. Teilt man nun die mittels Bildverarbeitung erhaltene Liste der Größe der Abscheidungen durch diese Zahl, so erhält man eine Liste mit den Volumina der Ablagerungen als Vielfache des Volumens eines Einzelpartikels. Von dieser Liste wurde ein Histogramm erstellt, das in Abbildung 5.12 zu sehen ist. Aus diesem kann man entnehmen, dass sehr viele der beobachteten Partikelabscheidungen sich aus weniger als fünf Einzelpartikeln zusammensetzen, insgesamt 54% (Exp. 1) bzw. 49% (Exp. 2) der segmentierten Bereiche, bezogen auf die Anzahl der gemessenen Partikelabscheidungen. 80% der Partikelabscheidungen sind in Experiment 1 aus weniger als 21 Einzelpartikeln zusammengesetzt; 80% der Abscheidungen in Experiment 2 aus weniger als 27 Einzelpartikeln. Es gibt demnach eine große Anzahl kleiner Partikelabscheidungen; allerdings wird das Gesamtvolumen der abgeschiedenen Partikel maßgeblich durch die restlichen 20 % der Partikel bestimmt. In Experiment 1 macht dieses Fünftel aller Partikel 87% der Gesamtvolumens der Abscheidungen aus, in Experiment 2 sind es ebenfalls 87%. Dies muss man beim Vergleichen der integralen mit den Ergebnissen der 3D-Auswertung beachten: die integrale Auswertung betont die großen Abscheidungscluster, da das Volumen der Abscheidung linear in die Auswertung eingeht. Bei der nun folgenden 3D-Analyse werden hingegen alle

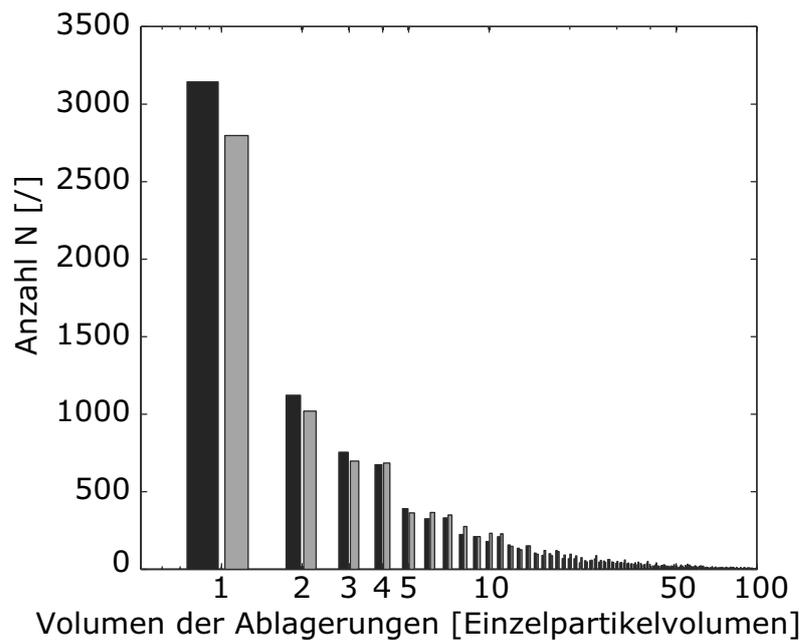


Abbildung 5.12: Größe der Abscheidungen in Experiment 1 (schwarz) und 2 (grau) als Vielfaches eines Einzelpartikels. Die im Experiment am häufigsten auftretende Partikelgröße sind Einzelpartikelabscheidungen. Dabei fällt auf, dass in Experiment 2 insgesamt die Abscheidungen ein wenig größer sind als in Experiment 1.

Partikelabscheidung als gleichwertig betrachtet, so dass die getroffenen Aussagen eine größere statistische Bedeutung haben als bei der integralen Analyse.

5.4.2 Position der Abscheidungen im Filter

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die axiale und radiale Verteilung der Partikel vorgestellt. Dazu musste die Bildinformation jeweils über eine charakteristische Filterdimension (Winkel bzw. Länge) gemittelt werden. Bei der 3D-Analyse der Partikel hingegen bleibt die Information jedes einzelnen Ablagerungsortes erhalten, so dass hier eine detailliertere Darstellung erfolgen kann. In den Abbildung 5.13 bis 5.16 wurden die geometrischen Schwerpunkte der Ablagerungsorte aufgetragen. Aus Gründen der Übersicht wurde in allen Fällen das Zentrum der Ablagerung mit einem für alle Ablagerungsgrößen gleichgroßen Punkt markiert.

In den ersten beiden Abbildungen ist jeweils die Projektion dieser Abscheidungscentren auf den Filterquerschnitt aufgetragen. Man macht zwei wichtige Beobachtungen, die sich mit den Aussagen der integralen Auswertung decken:

- Generell ist die Partikelablagerung im äußeren Drittel des Filters am höchsten. Bei Experiment 2 findet man mehr Partikel in Inneren des Filters als bei Ex-

periment 1.

- Bei beiden Experimenten sind in den äußeren Filterschichten Häufungen der lokalen Abscheidung zu beobachten, die sich in der radialen Auswertung als lokale Maxima zeigen.

Zusätzlich erhält man durch die Auftragungen in Abbildung 5.13 und 5.14 einen Eindruck von der Homogenität der Filterbeladung als Funktion des Winkels. Die Abscheidung zeigt teilweise lokale Cluster in der Projektionskarte. Die Variation der Abscheidung mit dem Winkel ist aber nicht so stark, dass man von einer asymmetrischen oder ungleichmäßigen Filterbeladung sprechen könnte.

In den Abbildungen 5.15 und 5.16 sind die Schwerpunktskoordinaten der Partikel als Funktion von Filterradius und -höhe aufgetragen. Auch hier spiegeln sich die wesentlichen Punkte der integralen Analyse wieder:

- Bei beiden Experimenten zeigt die Partikelabscheidung ein Maximum bei etwa einem Drittel der beobachteten Filterhöhe.
- Insgesamt ist die Partikelabscheidung in Experiment 2 stärker als in Experiment 1.

Aus den Abbildungen ist weiterhin zu entnehmen, dass für große Filterlängen nur noch wenige Partikelabscheidungen im Filterzentrum zu finden sind. Das lokale Maximum in z-Richtung wird einerseits durch eine sehr starke Partikelablagerung in den äußeren Filterbereichen erzeugt, andererseits sind an diesem Maximum auch sehr viele Partikel im Filterinneren zu finden. Es kann also davon ausgegangen werden, dass der Ablagerungsort eines Partikels auch davon abhängt, ob sich schon Partikel im Filter befinden. Die Ergebnisse sind mit der Vorstellung vereinbar, dass es bei einer weitgehenden Belegung der äußeren Porenräume eines Filters zur verstärkten Ablagerung im Inneren des Filters kommt.

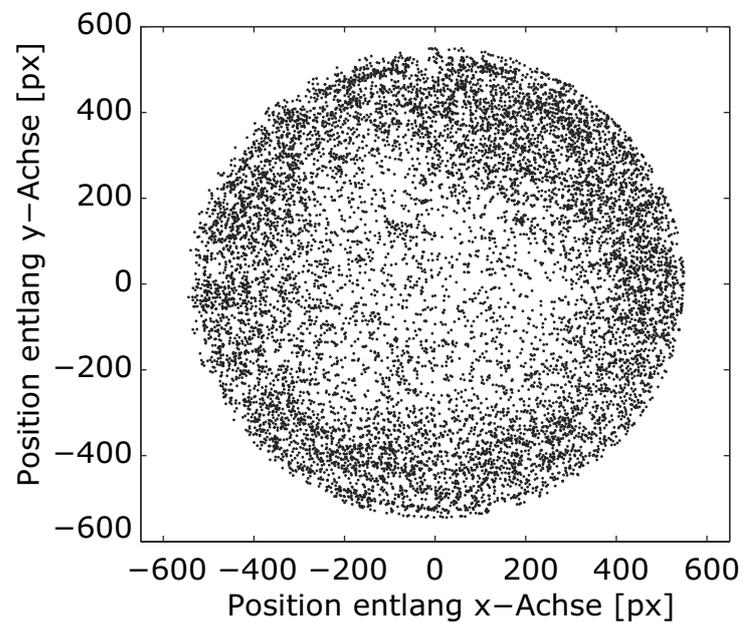


Abbildung 5.13: Positionen der Volumenschwerpunkte der Partikelabscheidungen im Filterquerschnitt für Experiment 1.

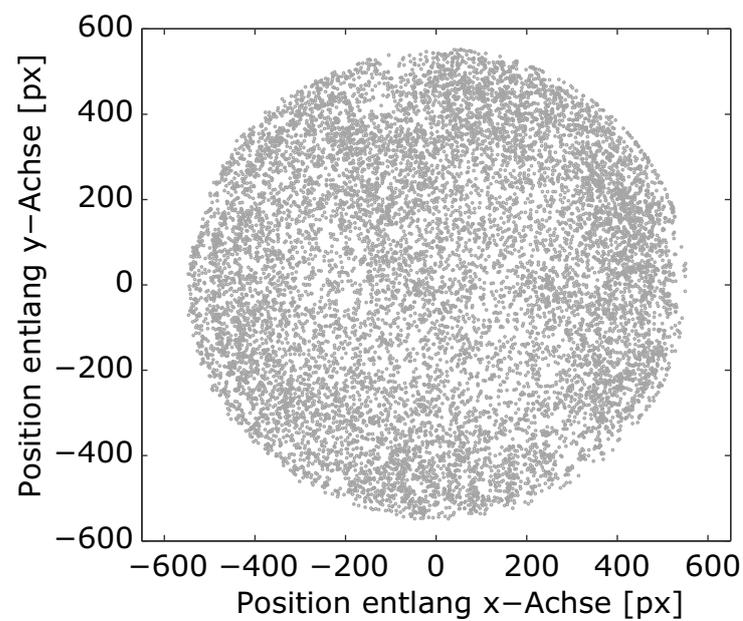


Abbildung 5.14: Positionen der Volumenschwerpunkte der Partikelabscheidungen im Filterquerschnitt für Experiment 2.

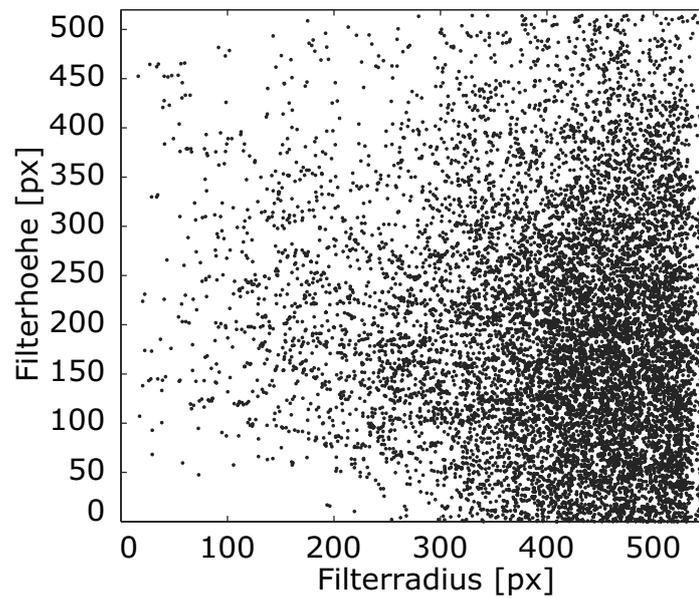


Abbildung 5.15: Positionen der Volumenschwerpunkte der Partikelabscheidungen als Funktion von Filterradius und Filterhöhe für Experiment 1.

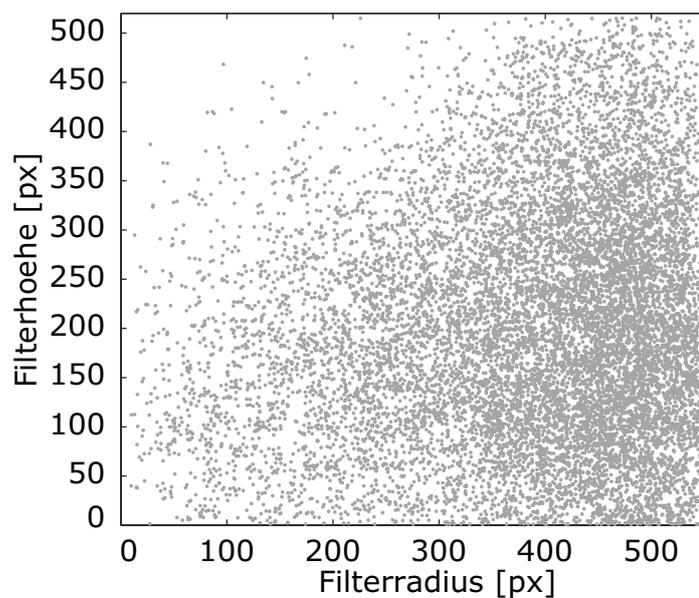


Abbildung 5.16: Positionen der Volumenschwerpunkte der Partikelabscheidungen als Funktion von Filterradius und Filterhöhe für Experiment 2.

5.5 Die Zuordnung zu einem Kollektor

Wie im Kapitel 3 ausgeführt, werden Tiefenfiltrationsprozesse und Strömungen in Kugel-Schüttbetten häufig mit Hilfe des Einzelkollektor-Modells beschrieben. Daher sollen an dieser Stelle die experimentelle Ergebnisse dieser Arbeit auf die Anlagerung von Partikeln an einem einzelnen repräsentativen Kollektor zurückgeführt werden. Möchte man die beobachteten, abgeschiedenen Partikel jeweils zu einem Kollektor zuordnen, muss man als erstes definieren, welche Bedingung erfüllt sein soll, damit Partikel und Kollektor zueinander gehören sollen. Beim Betrachten tomographischer Schichten kann man intuitiv für nahezu jedes auftretende Kolloid einen dazugehörigen Kollektor benennen. Allerdings ist auch in diesem Fall, siehe Abbildung 5.11, Bild C und D, manchmal keine eindeutige Aussage möglich. Dies kann beispielweise der Fall sein, wenn die Ablagerung groß genug ist, um gleichzeitig in Kontakt zu mehreren Kugeln zu stehen; im dreidimensionalen Fall gilt dies umso stärker. Daher muss man ein Kriterium finden, mit dem man die Nähe zwischen Partikel und Kollektor bestimmt. Im vorliegenden Fall sind durch die Bildverarbeitung die Zentren von allen Kugeln und allen Partikelabscheidungen (Clustern) bekannt. Wir setzen dabei voraus, dass die Filterkugeln tatsächlich Kugeln im geometrischen Sinne sind und die Partikel durch ihre geringe Größe ebenfalls als Objekte mit definiertem, aber kleinen Radius aufgefasst werden können. Dann ergibt sich im Fall von direktem Kontakt die errechnete Äquivalentradius-Distanz D_R zwischen den beiden Zentren $Z_K = (x_K, y_K, z_K)$ und $Z_P = (x_P, y_P, z_P)$ als Summe der Radien der Objekte r_K und r_P :

$$D_R = r_K + r_P$$

Durch die leicht von einer Kugel abweichende Form des Filtermittels und die ebenfalls nicht sphärischen Partikel kann die tatsächliche von der Äquivalentradius-Distanz abweichen. Daher braucht man einen gewissen Spielraum in Form eines zusätzlich gewährten Schwellwertes s :

$$D_R = r_K + r_P + s$$

Die im Tomogramm gemessene Distanz zwischen den beiden Körperschwerpunkten D_T ist von dieser Betrachtung völlig losgelöst, denn diese berechnet sich lediglich als Abstand der Zentren im euklidischen Raum:

$$D_T = \sqrt{(x_K - x_P)^2 + (y_K - y_P)^2 + (z_K - z_P)^2}$$

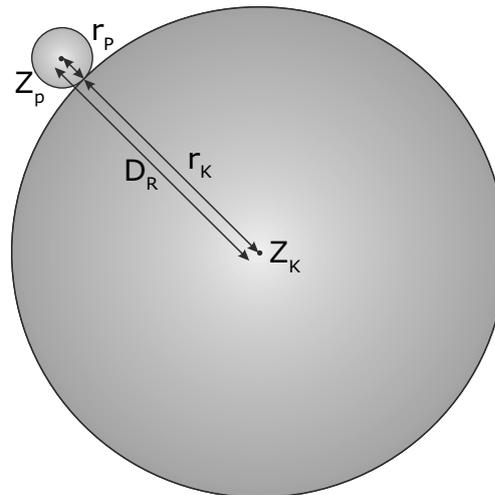


Abbildung 5.17: Schematische Darstellung der Zuordnung eines Partikel zu einer Schüttungskugel.

Nun kann man definieren:

Ein Partikelcluster mit einem Zentrum Z_P stehe dann mit einem Kollektor, der ein Zentrum Z_K besitzt, in Kontakt, wenn die Differenz aus Zentrumsdistanz im Tomogramm D_T und Äquivalenzradiusdistanz D_R kleiner oder gleich Null ist.

$$D_T - D_R \leq 0$$

Diese Differenz wird im Folgenden als Durchdringung bezeichnet. Auf Grundlage dieser Definition wurde nun ein MatLab-Skript erstellt, mit dem - ausgehend von den Ergebnistabellen von Kugeln und Partikeln - die tatsächliche euklidische Distanz mit der Äquivalenzradiusdistanz verglichen wurde. Ist dabei für eine Paarung Kugel-Partikel die Kontaktbedingung erfüllt, wird diese Paarung unter Angabe der jeweiligen Objekt-Identifikationsnummern (ID), der euklidischen Distanz und der Durchdringung in eine Tabelle eingetragen. Zusätzlich dazu wird der *Kontaktwinkel* von Partikel und Kugel berechnet und ebenfalls in die Tabelle eingetragen. Der Kontaktwinkel wird errechnet, indem der Winkel zwischen der Verbindungslinie beider Objektzentren und der Hauptströmungsrichtung gebildet wird. Die Winkeldefinition ist dabei so, dass der Nordpol der Filterkugeln, also die stromab gelegene Seite, Null Grad entspricht, und die gegenüberliegende Seite, der Südpol, 180 Grad. Der Quellcode dieser Zuordnung ist im Anhang aufgeführt.

Nun gilt es, diese Tabelle, in denen die Kugel-Partikel-Paarungen mit ihren jeweiligen Kenngrößen eingetragen sind, auszuwerten. Bevor man jedoch damit anfangen

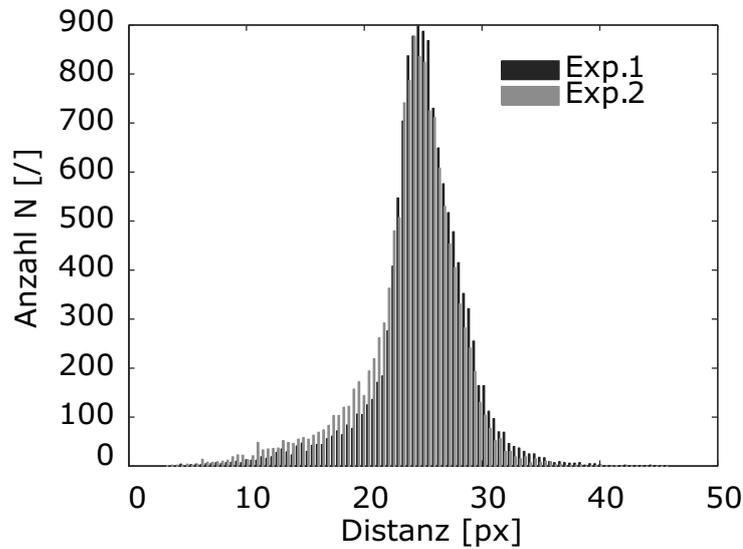


Abbildung 5.18: Distanzverteilung der nächstgelegenen Kugelzentren vom Mittelpunkt eines Partikelclusters. Bei beiden Experimenten wird ein Häufigkeitsmaximum bei ca. 25 Pixeln beobachtet; dies entspricht dem mittleren Radius einer Filterkugel.

kann, muss man den Einfluss des Schwellwertes s abschätzen und einen geeigneten Wert für diese Konstante festlegen. Wie oben erläutert, erweitert der Schwellwert die strenge Kontaktdefinition zwischen kugelförmigen Objekten auf Fälle, in denen die Körper nicht exakt sphärisch sind. Wird der Schwellwert zu klein gewählt, werden nur sehr wenigen Kontakte gefundenen. Wird er zu groß gewählt, insbesondere größer als der mittlere Durchmesser einer Kugel, so wird ein einzelnes Partikel auch Kugeln zugeordnet, die sich nicht in direkter Nachbarschaft befinden. Kontrollieren kann man die Auswirkungen der Schwellwertwahl durch Auswertung der Distanzverteilung zwischen Partikel und Kugel (siehe Abbildung 5.18). Für eine sinnvolle Zuordnung sollte der Median dieser Distanzen bei Werten, die etwas größer als der mittlere Radius sind, liegen. Dann ist gewährleistet, dass lediglich die nächsten Kugelnachbarn der Kolloidabscheidung berücksichtigt werden. Auf keinen Fall sollten Distanzwerte größer als der mittlere Kugeldurchmesser auftauchen, da dann auch weit entfernte Nachbarn als Kontaktpartner betrachtet werden. Variiert man den Schwellwert in groben Schritten, kann man feststellen, dass diese beiden Fälle - nächste bzw. weiter entfernte Nachbarn - gut unterschieden werden. Daher wurde für die folgende Auswertung ein einheitlicher Schwellwert von $s = 10 \text{ Pixel}$ verwendet, der die Distanzverteilung einer nächsten Nachbarschaftsbeziehung gut wiedergibt. Nachdem nun die Paarungen zwischen Partikel und Kugeln ermittelt wurden, sollen diese bezüglich ihres Kontaktwinkels ausgewertet werden.

Betrachtet man alle aufgefundenen Paarungen, so ergibt sich das in Abbildung 5.19 erzeugte Histogramm der Kontaktwinkelverteilung von Kolloidabscheidungen an einem Einzelkollektor unter den Strömungsbedingungen von Experiment 1 (schwarz) bzw. Experiment 2 (grau). Bei einer angenommenen gleichmäßigen Partikelverteilung auf die zur Verfügung stehende Oberfläche erhält man eine sinusförmige Verteilung, also sehr wenige Partikel an Nord- und Südpol (0° bzw. 180°) und ein Anlagerungsmaximum bei 90° . In der tatsächlich berechneten Verteilung werden in der Tat nur sehr wenige Partikel in der Nähe von Nord- und Südpol beobachtet. Zwischen $\Theta = 0^\circ$ und 30° steigt die Auffindewahrscheinlichkeit in etwa linear an, bis sie bei etwa 30° ein kleines lokales Maximum erreicht. Danach erstreckt sich zwischen 35° und 130° ein ausgedehntes Plateau, in dem die Zahl der Anlagerungen weitgehend konstant bei etwa 60 Einzelanlagerungen pro Winkel bleibt. Bei einem Kontaktwinkel größer als ca. 130° beginnt die Anlagerungswahrscheinlichkeit wieder stark zu steigen, bis sie bei ca. 150° ein Maximum erreicht, das in etwa dem dreifachen Wert der Plateau-Anlagerungswahrscheinlichkeit entspricht (nahezu 180 Einzelanlagerungen pro Winkel). Nach Durchlaufen dieses Maximalwertes fällt die Ablagerungswahrscheinlichkeit steil ab, bis bei 180° keine Ablagerungen mehr beobachtet werden.

Dieser prinzipielle Verlauf ist mit der von Ihme und anderen [78] vorgestellten Winkelverteilung des Partikelantransports an einem Einzelkollektor vereinbar, da diese ebenfalls einen größeren Partikelzustrom auf der strömungszugewandten Seite des Kollektors vorhersagt. Allerdings wurde bei der in [78] vorgestellten Berechnung die Rolle der Kugel-Kugel-Kontakte für den Fall abstoßender Wechselwirkung zwischen Partikel und Kollektor nicht betrachtet.

5.6 Die Rolle der Kugel-Kugel-Kontakte

In Kapitel 3 wurden experimentelle Ergebnisse aus der Literatur vorgestellt, nach denen die Ablagerung von Kolloiden im Tiefenfilter bei abstoßender Wechselwirkung zwischen Partikel und Kugel verstärkt an den Kontaktpunkten von jeweils zwei Schüttungskugeln stattfindet [51, 57–59]. Allerdings sind diese Ergebnisse bisher eher exemplarisch, d.h. auf Einzelbeobachtungen basierend oder lediglich danach ausgewertet, *ob* Ablagerungen in der Nähe von Kugel-Kugel-Kontakten stattfinden, jedoch nicht *unter welchem Winkel* bzw. in welcher Position relativ zum Kontaktpunkt. Daher ist in der vorliegenden Arbeit untersucht worden, in welcher Art und Weise die Winkelverteilung der Partikel mit der Winkelverteilung der Kontaktpunkte zwischen zwei Kugeln im Mittel zusammenhängt. Um den Kontaktwinkel zwischen zwei Kugeln zu bestimmen, wird ähnlich vorgegangen wie bei der Bestimmung des

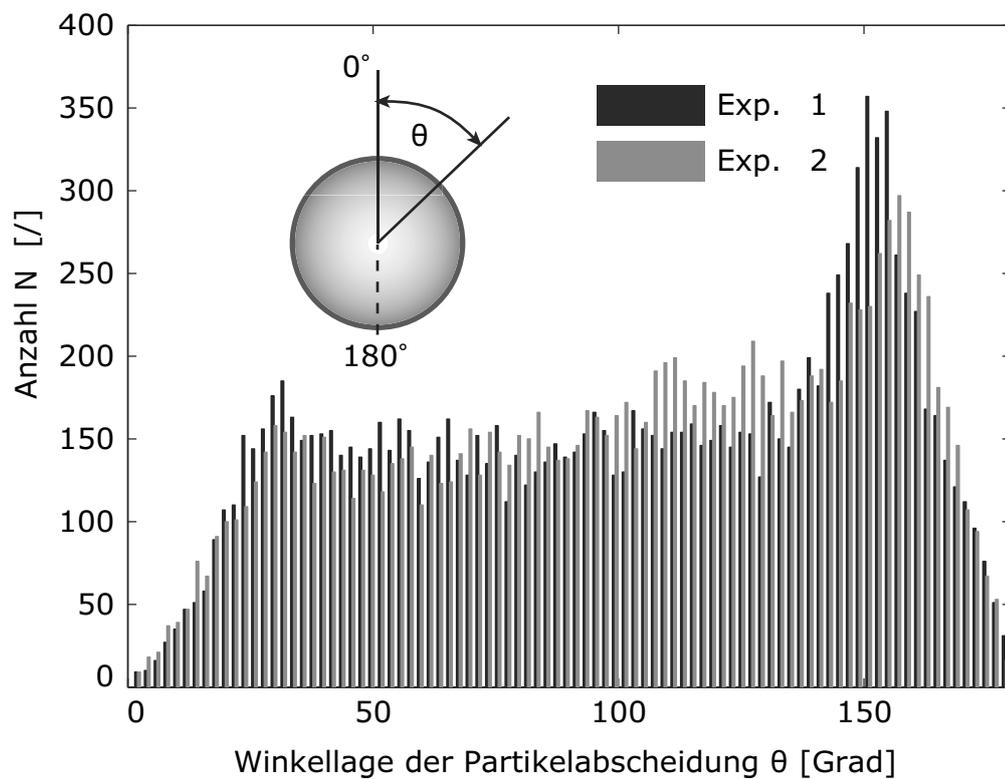


Abbildung 5.19: Winkellage der Partikelablagerungen: 0° entsprechen dem Nordpol der Filterkugel (strömungsabgewandte Seite). Es wird eine starke Winkelabhängigkeit der Ablagerungen mit zwei lokalen Maxima beobachtet.

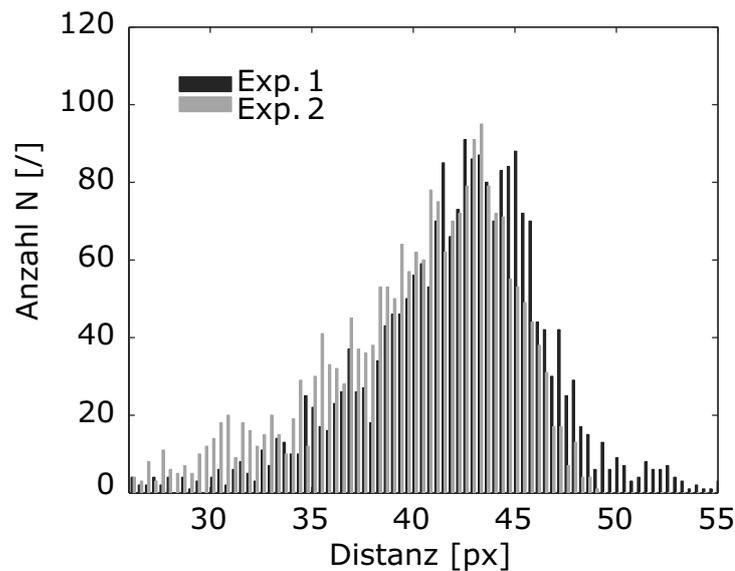


Abbildung 5.20: Verteilung der Distanzen bei der Zuordnung von Schüttbettkugeln zu ihren nächsten Nachbarn.

Kontaktwinkels der Partikelabscheidung. Das zu diesem Zweck genutzte Skript kann mühelos modifiziert werden, um Kontakte zwischen benachbarten Kugeln zu analysieren, indem die Tabelle der Kugelzentren Z_K mit sich selbst verglichen wird, und so jede Kugel einem Kugelzentrum in der Umgebung zugeordnet wird. Auch in diesem Fall betrachtet man zunächst die Verteilung der Distanzen der gefundenen Kontaktpaare (siehe Abbildung 5.20), um die Wahl des Schwellwertes zu verifizieren. Hierbei ist es so, dass bei einem Schwellwert von $s = 15$ die Distanzverteilung für Distanzen oberhalb $D_T \approx 30 \text{ Pixel}$ monomodal ist, mit einem Maximum, das bei $D_T \approx 44 \text{ Pixel}$ liegt. Dies ist zwar deutlich weniger als das Doppelte des mittleren Radius der Kugeln ($2r_K \approx 50 \text{ Pixel}$), da jedoch wie in Abschnitt 5.2 gezeigt auch Kugeln mit kleinerem Durchmesser minimalen Nenn-Durchmesser im Schüttbett vorhanden sind, wirkt dies auf die mittlere Distanz zwischen zwei Kugeln reduzierend. Unterhalb einer Distanz von $D_T \approx 30 \text{ Pixel}$ treten ebenfalls einige Kugel-Kugel-Kontakte auf, mit einem lokalen Maximum bei ca. $D_T \approx 18 \text{ Pixel}$. Diese Kontakte werden im folgenden ignoriert, da sie mit großer Wahrscheinlichkeit Artefakte sind. Die Auswertung der Winkelverteilung der Kontakte zwischen zwei Kugeln, die eine Distanz größer $D_T \approx 30 \text{ Pixel}$ und kleiner $D_T \approx 60 \text{ Pixel}$ aufweisen, ist in Abbildung 5.21 zu sehen.

Es wird eine symmetrische Verteilung mit zwei breiten lokalen Maxima beobachtet. Diese befinden sich bei Kontaktwinkeln von etwa $\Theta = 45^\circ$ und $\Theta = 135^\circ$. An Nord- und Südpol der Kugeln existieren nahezu keine Kontakte zu benachbarten Kugeln. Auch bei einem Kontaktwinkel von $\Theta \approx 90^\circ$ sind nur wenige Kontakte zu finden. Aus der Literatur sind dazu experimentelle Tomographiedaten bekannt (siehe Kapitel 2)

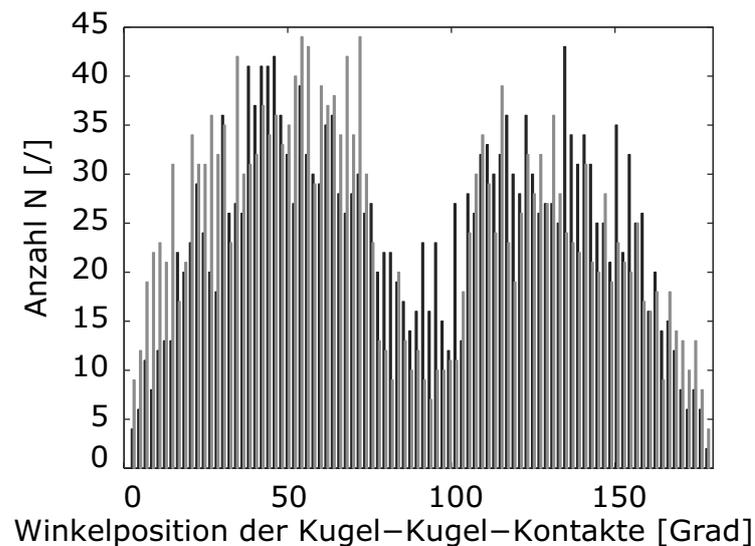


Abbildung 5.21: Winkelverteilung der Kugelkontakte in der gesamten Filterpackung. Es werden lokale Maxima der Kontakthäufigkeit bei Kontaktwinkeln von $\Theta = 45^\circ$ und $\Theta = 135^\circ$ beobachtet. Schwarz = Experiment 1, Grau = Experiment 2.

die den Einfluss der Wandordnung auf die Kontaktwinkelverteilung in einem Schüttbett belegen. Allerdings erfährt das dort besprochene Kugelbett den ordnenden Einfluss einer *unter* ihm befindlichen Wand. Das bedeutet, dass wenn man diese Ergebnisse mit den hier gezeigten vergleichen möchte, man zumindest eine Koordinatentransformation durchführen muss. Um den Einfluss einer *seitlichen* Wand zu studieren, muss das System um 90° gedreht werden. Dies wurde für die in [29] vorgestellten Daten getan, sie werden hier zusammen mit den Daten *dieser* Arbeit in Abbildung 5.22 gezeigt. Die Arbeit von Reimann et al. [29] untersucht die Winkelverteilung von Kugel-Kugel-Kontakten abhängig von deren Abstand von der ordnenden Wand. Je näher sich dort die Kugeln an der Wand befinden, umso stärker ist die Ausprägung zweier Winkelmaxima, die auf hexagonale Packungsstrukturen zurückzuführen sind.

Diese Winkel befinden sich im dort verwendeten Koordinatensystem (Wand unten, Nordpol oben) bei $\Theta = 37^\circ$ und $\Theta = 180^\circ - 37^\circ = 143^\circ$. Nach Koordinatentransformation entsprechen diese Winkel $\Theta = 90^\circ - 37^\circ = 53^\circ$ und $\Theta = 180^\circ - 53^\circ = 127^\circ$. Das entspricht nahezu den Lagen der Kontaktwinkelmaxima, die auch in dieser Arbeit beobachtet wurden ($\Theta = 45^\circ$ und $\Theta = 135^\circ$). Die Unterschiede in den Winkelverteilungen kommen vor allem durch die leicht veränderte Wirkungsweise der begrenzenden Wand zustande: das Aufliegen auf einer Wand, die sich unter den Kugeln befindet, ermöglicht den Kugeln sehr leicht, bei $\Theta = 90^\circ$ (Koordinatensystem aus [29]) bzw. $\Theta = 0^\circ$ (Koordinatensystem dieser Arbeit) Kontakte zu bilden,

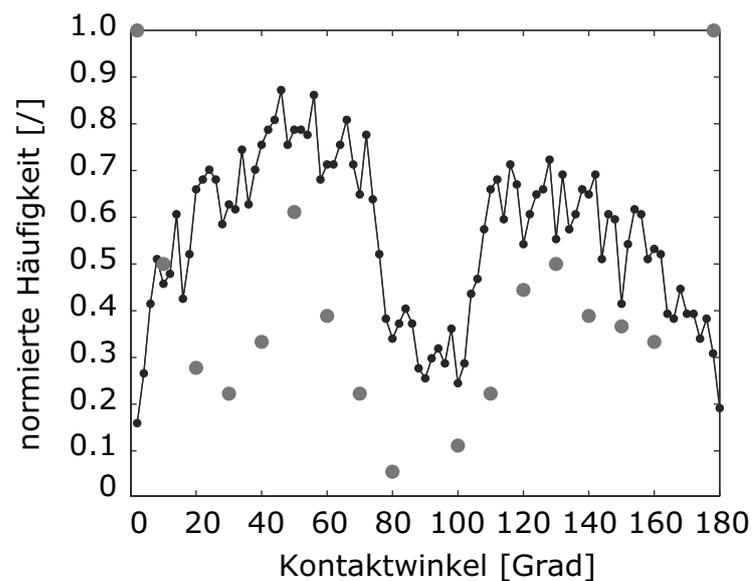


Abbildung 5.22: Vergleich der Kugel-Kugel-Kontaktwinkel, die in dieser Arbeit ermittelt wurden (schwarze Punktkurve) mit denen von Reimann et al. [29], die mit einer anderen Methodik [79] Ergebnisse an einer ähnlichen Packungskonfiguration gewonnen haben (graue Punkte).

während es an einer - zumal leicht gekrümmten - seitlichen Wand schwieriger ist Kugeln übereinander zu positionieren, um Kontakte bei $\Theta = 0^\circ$ herzustellen.

Die Frage, die nach Betrachten dieser Ergebnisse im Raum steht, ist, ob es einen Zusammenhang zwischen den Winkellagen der Kugel-Kugel-Kontakte und denen der Partikelabscheidungen gibt. Die in Kapitel 3 vorgestellten experimentellen Ergebnisse legen nahe, dass für eine abstoßende Wechselwirkung zwischen Partikel und Kollektor vor allem die Bereiche in der Nähe von Kugel-Kugel-Kontakten als Abscheidorte infrage kommen. Wie aber hat man sich die Anlagerung an solche Kontakte konkret vorzustellen? Dazu wird im folgenden eine geometrische Analyse einer solchen kontaktpunktnahen Abscheidung durchgeführt und mit den vorhandenen experimentellen Daten verglichen.

Betrachtet man die Verteilungen der Winkellagen von Kugelkontakten (Abbildung 5.21) und Partikelabscheidungen (5.19) so ist unmittelbar einsichtig, dass es einen Zusammenhang zwischen der Lage der Maxima in beiden Abbildungen gibt. Das Abscheidemaximum bei $\Theta = 150^\circ$, also auf der strömungszugewandten Seite (Luv) der Kugeln, kommt offenbar dadurch zustande, dass Partikel am Kontaktpunkt zweier Kugeln abgeschieden werden. Das Maximum der Kontaktpunkte befindet sich bei etwa $\Theta = 135^\circ..140^\circ$, während die Partikel bei etwas größeren Winkeln, also im Luv des Kontaktpunktes abgeschieden werden. Eine Begründung dafür ist, dass die Partikel zwar klein sind, aber dennoch eine räumliche Ausdehnung besitzen, d.h.

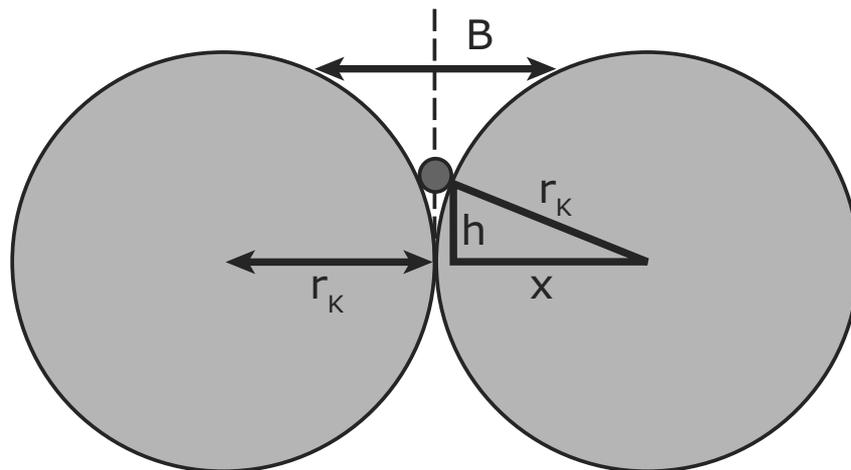


Abbildung 5.23: Schemazeichnung zum Abstand zweier Kugeloberflächen in der Nähe eines Kugel-Kugel-Kontaktpunktes. Nicht maßstäblich.

ein Partikel kann aus rein geometrischen Ursachen nicht direkt am Kontaktpunkt abgeschieden werden. Zur Illustration dieses Sachverhaltes ist in Abbildung 5.23 eine Schemaskizze gezeigt, die den Zusammenhang zwischen Abstand h vom Kontaktpunkt und der Breite des Spalts zwischen den Kugeloberflächen darstellt.

$$r_K^2 = h^2 + x^2 \quad (5.5)$$

Die Spaltbreite B berechnet sich folgendermaßen:

$$B = 2(r_K - x) \quad (5.6)$$

Stellt man Gleichung 5.5 nach x um und setzt dieses in Gleichung 5.6 ein, so erhält man eine Gleichung, die den Zusammenhang zwischen der Spaltbreite und der Distanz des Partikels vom Kontaktpunkt beschreibt. Aus rein geometrischen Überlegungen gelten also gewisse Mindestabstände, die ein einzelnes oder mehrere Partikel zum Kontaktpunkt haben müssen. Daraus ergibt sich natürlich auch eine Winkeldifferenz, die es zwischen Kontaktwinkel und Abscheidewinkel geben muss, da ein Partikel gar nicht am Winkelort des Kontaktpunktes aufgefunden werden kann. In Tabelle 5.2 ist aufgelistet, wie groß diese Winkeldifferenzen für ausgewählte Spaltbreiten, die ganzen Vielfachen des Partikeldurchmessers entsprechen, sind.

Ein Einzelpartikel ist gemäß dieser Betrachtung mindestens $15,4^\circ$ vor oder hinter dem dazugehörigen Filterkugel-Kontaktpunkt aufzufinden, und nicht an genau der gleichen Winkelposition. Mit dieser Information kann man die beobachteten Unterschiede der Lage der Maxima gut nachvollziehen: viele der Partikel werden im

Spaltbreite [$N * d_p$]	Distanz [μm]	Winkeldifferenz [Grad]
1	36,4	15,4
2	51,0	21,8
3	61,9	26,8
4	70,8	31,0

Tabelle 5.2: Größe der Winkeldifferenzen zwischen Kontaktwinkel und Abscheidewinkel, sowie die Distanz zum Kontaktpunkt für verschiedenen Spaltbreiten.

Zwickel eingefangen und bleiben auf der strömungszugewandten Seite des Kontaktpunkts. Dies erklärt das Abscheidemaximum bei $\Theta = 150^\circ$ (Experiment 1) bzw. $\Theta = 155^\circ$ (Experiment 2); allerdings nicht das bei $\Theta = 30^\circ$, da hier die strömungszugewandte Seite der Kugel-Kugel-Kontakte im Mittel bei etwa $\Theta = 45^\circ + 15^\circ = 60^\circ$ liegt; an dieser Stelle ist jedoch kein Partikelmaximum zu beobachten. Hier kann eine Beobachtung weiterhelfen, die bei der numerischen Simulation von Strömungen in Kugelschüttungen gemacht wurde [80]. In einer durch Mikrotomographie gewonnenen Kugelpackungsgeometrie wurden von Li et al. sogenannte lattice-Boltzmann-Simulationen durchgeführt, um das Strömungsfeld und den Partikeltransport in einer Kugelschüttung zu untersuchen. Dabei wurden Gebiete mit negativen z-Komponenten der Geschwindigkeit beobachtet, die sich überwiegend in der Nähe von Partikel-Partikel-Kontaktpunkten befanden. In einer weiterführenden Auswertung der Partikelbewegung in diesem errechneten Strömungsfeld wurde ferner festgestellt, dass die Aufenthaltsdauer im Filter von Partikeln, die in solche *backward flow zones* gelangen, deutlich erhöht ist. Möglicherweise könnten die sich in Gegenstromrichtung bewegenden Partikel auf der lee-Seite eines Zwickels abgeschieden werden. Diese Betrachtungsweise deckt sich mit den in der vorliegenden Arbeit gemachten Untersuchungen.

5.7 Einfluss der Partikelgröße und -form

In Abbildung 5.19 wurde die Winkelverteilung aller Partikelabscheidungen vorgestellt, unabhängig von deren geometrischen Eigenschaften. Tatsächlich ist es so, dass man für verschiedenartige Ablagerungen eine Tendenz zu unterschiedlichem Ablagerungsverhalten beobachten kann. In Abbildung 5.24 ist die Winkelverteilung von kleinen, flächigen Partikelablagerungen (Zirkularität > 2 , Volumen < 150 Voxel) aus Experiment 2 dargestellt. Man sieht zwei ausgeprägte Maxima, die bei Kontaktwinkeln von etwa $\Theta = 30^\circ$ und $\Theta = 155^\circ$ auftreten. Man kann dies so interpretieren, dass nur flächenhafte, kleinere Anlagerungen in der Nähe von Kontaktpunkten

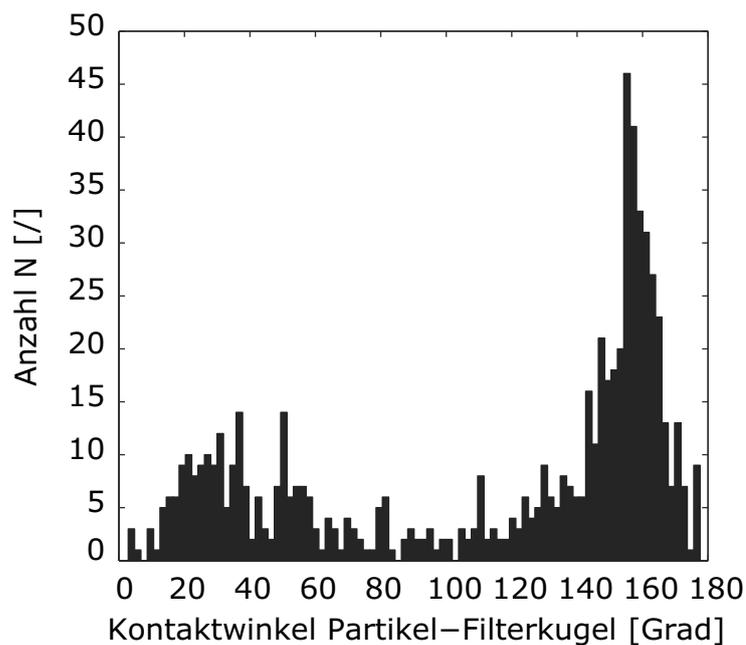


Abbildung 5.24: Verteilung der Kontaktwinkel von kleinen, flächigen Partikelablagerungen (Zirkularität > 2 , Volumen < 150 Voxel) aus Experiment 2. Die Verteilung zeigt zwei ausgeprägte Maxima, die mit der Winkellage der Maxima in Winkelverteilung aller Partikel (siehe Abbildung 5.19) zusammenfallen.

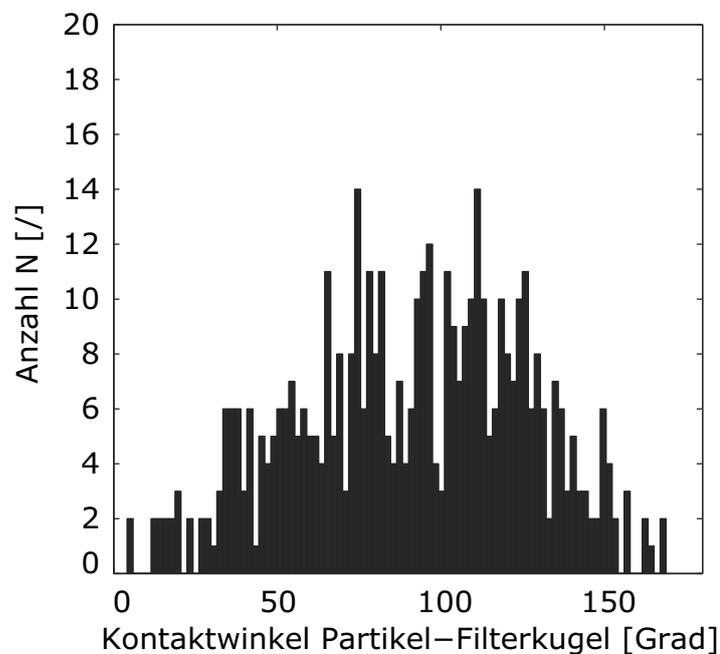


Abbildung 5.25: Verteilung der Kontaktwinkel von großen, runden Partikelablagerungen (Zirkularität < 2 , Volumen > 150 Voxel) aus Experiment 2. Das breite Maximum der Winkelverteilung befindet sich bei etwa $\Theta = 90^\circ$.

abgeschieden werden, da nur diese in der Lage sind, sich dem Kontaktpunkt ausreichend zu nähern. In Abbildung 5.25 ist im Gegensatz dazu die Winkelverteilung von großen, runden Partikelablagerungen (Zirkularität < 2 , Volumen > 150 Voxel) dargestellt, hier beobachtet man eine völlig andere Winkelverteilung. Das breite Maximum befindet sich in diesem Fall bei ca. $\Theta = 90^\circ$. Dies deutet darauf hin, dass für große, runde Partikelabscheidungen, beispielsweise Agglomerate, die Ablagerung überwiegend in der Mitte der Porenräume stattfindet, also fern von Kugel-Kugel-Kontaktpunkten. Die hier für Experiment 2 dargestellten Unterschiede des Ablagerungswinkels für verschiedene Partikel gelten analog für die Partikelcluster in Experiment 1.

5.8 Vergleich mit Simulationen

Im Rahmen des Graduiertenkollegs **PoreNet** der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) wurden von einem Kooperationspartner (Dr. Norbert Riefler, Institut für Werkstofftechnik der Universität Bremen) numerische Simulationen zum Partikeltransport in einem Tiefenfilter durchgeführt. Dabei wurden mit einem kommerziell erhältlichen Softwarepaket (Gambit/Fluent, ANSYS Corp.) die Trajektorien von Partikeln im Strömungsfeld in einer zufälligen Kugelpackung ausgewertet. Die Ergebnisse dieser Simulation sollen in diesem Abschnitt mit den experimentellen Ergebnissen der vorliegenden Arbeit verglichen werden.

Der erste Schritt bei dieser Simulation ist die Erzeugung einer zufälligen Schüttung gleichgroßer Kugeln, die das Filterbett darstellt. Die Schüttung besteht aus insgesamt 248 Kugeln mit einem Durchmesser von $d_k = (275 \pm 25)\mu\text{m}$ in einem Zylinder mit einem Innendurchmesser von $1,77\text{ mm}$. Die Gesamtlänge der Schüttung beträgt $l = 2\text{ mm}$ bei einer Schüttungsporosität von $\varepsilon = 0,43$. Die Geometrie der Schüttung wurde mit dem Algorithmus von Jodrey und Toney [81] erzeugt.

Mit einem 3D Mesher (Gambit) wird diese abstrakte Geometrie nun diskretisiert, so dass im Porenraum der Packung die Strömungssimulation durchgeführt werden kann. Nun wird unter Berücksichtigung der Parameter des Filtrationsexperimentes das Strömungsfeld berechnet. Aus diesem Vektorfeld werden nun die Trajektorien für sehr viele ($N > 500$) Einzelpartikel berechnet, die an zufälligen Stellen des Filtereinlaufs gestartet werden. Dabei besteht die Möglichkeit, dass sich ein Partikel auf einer Trajektorie bewegt, auf der es überhaupt nicht mit einer Kugeloberfläche in Berührung kommt. Diese durchlaufenden Partikel stellen einen vergleichsweise hohen Anteil an den gesamten betrachteten Partikeln dar; bei einer Schüttungsporosität von $\varepsilon = 0,43$ sind es in dieser Schüttung immerhin 47,2%. Dies kann jedoch damit begründet werden, dass eine nur sehr kurze Packung simuliert

werden kann. In der Praxis wäre die Filterlänge und somit die Einfangwahrscheinlichkeit deutlich höher. Wenn ein Partikel sich durch den Filter bewegt, kann es jedoch auch dazu kommen, dass es mit der Oberfläche einer Filterkugel kollidiert. Im strengen Sinne bedeutet dies, dass die Trajektorie des Partikels der Schüttungskugel mindestens bis auf einen Abstand von $A = r_p =: 5\mu m$ nahekommt. Ist ein Partikel nahe genug an der Filteroberfläche, entscheidet die Kräftebilanz aus anziehenden und abstoßenden Kräften, ob es zu einer Anlagerung des Partikels oder zum Weitertransport des Partikels kommt. In der betrachteten Simulation wurden für diese Abschätzung die van-der-Waals-Kraft mit den durch das Strömungsfeld erzeugten Scherkräften bilanziert. Als Ergebnis kann man eine winkelabhängige - Wahrscheinlichkeit angeben, mit der ein Partikel abgeschieden wird. Als Produkt dieser Wahrscheinlichkeit und der winkelabhängigen Kollisionswahrscheinlichkeit erhält man die *relative Abscheidefunktion*. Diese Verteilung ist in Abbildung 5.26 zusammen mit den experimentellen Daten der winkelabhängigen Abscheidung von Experiment 1 dargestellt. In Abbildung 5.27 wurden die Simulationsergebnisse ausschließlich mit Partikeln verglichen, die eine flache Form besitzen (Zirkularität > 2). Durch diese Eingrenzung kann man annehmen, dass die betrachteten Abscheidungen durch Monolayer-artige Einzelpartikelabscheidungen erzeugt werden können. Diese Annahme ist im Einklang mit der in der Simulation betrachteten Einzelpartikelabscheidung, die den Aufbau ausgedehnter Abscheidungen ausschließt. Beim Vergleich von Simulation und Experiment sieht man, dass sich eine ähnliche Winkelverteilung für die experimentell ermittelten Daten und die simulierte Partikelabscheidung ergibt. Man beobachtet eine starke Betonung der südlichen, strömungszugewandten Hemisphäre, d.h. des Bereichs für $\Theta = 90^\circ \dots 180^\circ$. Das Maximum der simulierten Abscheidungen liegt dabei bei $\Theta = 140^\circ$, das Maximum der experimentellen Abscheidungen bei $\Theta = 150^\circ$. Während bei den Simulationen für Winkel $\Theta < 90^\circ$ fast keine Abscheidungen beobachtet werden, gibt es aber bei den experimentellen Abscheidungen erhebliche Beiträge auch auf der nördlichen Hemisphäre, insbesondere für Partikel ohne Zirkularitätsbeschränkung.

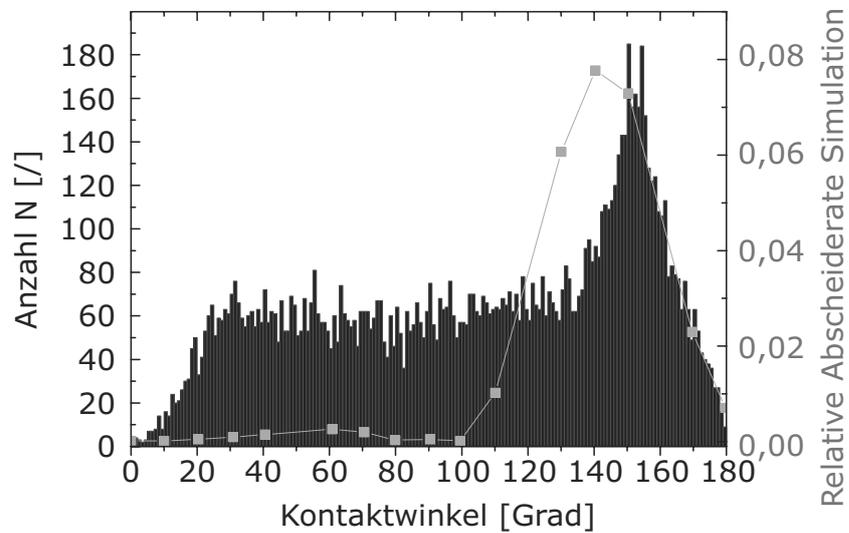


Abbildung 5.26: Vergleich der Winkelverteilungen aller Abscheidungen (vorliegende Arbeit) mit Simulationsergebnissen von Norbert Riefler [82].

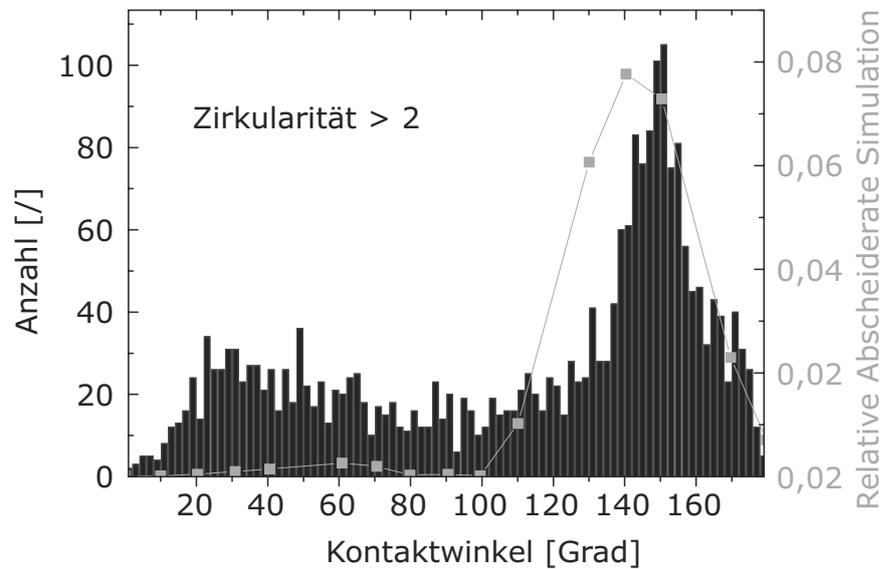


Abbildung 5.27: Vergleich der Winkelverteilungen flächenhafter Abscheidungen (vorliegende Arbeit) mit Simulationsergebnissen von Norbert Riefler [82].

6 Zusammenfassung und Ausblick

Kolloidabscheidungen in zufälligen Packungen monomodaler Glaskugeln können mit Hilfe von differentieller Synchrotron-Röntgentomographie sichtbar gemacht werden. Wendet man Methoden der Bildverarbeitung auf die entstandenen Tomogramme an, so kann man die Ablagerungsorte hinsichtlich ihrer axialen und radialen Position, ihrer Größe und Form, sowie ihrer Winkelposition an einem Einzelkollektor charakterisieren. Hierbei beobachtet man einen starken Einfluss der lokalen Gegebenheiten in der Kugelpackung sowie einige durch abstoßende Wechselwirkung zwischen Partikeln und Filterkugeln herrührende Charakteristika. Die wichtigsten Beobachtungen sollen an dieser Stelle nochmals zusammengefasst und kommentiert werden.

1. Nichtmonotones axiales Ablagerungsprofil

Betrachtet man die Konzentration der Partikel als Funktion der Filterlauflänge, beobachtet man für das untersuchte Filtersegment ein nichtmonotones Abscheidungsverhalten mit lokalem Maximum. Das bedeutet, dass die Menge der abgeschiedenen Partikel stark von der Position entlang der Filterlänge abhängt. Dies ist an sich keine ungewöhnliche Beobachtung, da die Partikel von einer Seite in den Filter eintreten und man somit auch bei anziehender Wechselwirkung ein exponentielles Abfallen mit der Filterlänge erwarten würde. In der Literatur wird von nichtmonotonen Verläufen bei abstoßender Wechselwirkung berichtet; diese Daten stammen ebenfalls aus Röntgentomographie-Experimenten. Eine mögliche Erklärung für diese Beobachtung wäre ein dynamischer Prozess von Partikelablösungen, der dafür sorgt, dass es ein wanderndes Ablagerungsmaximum gibt. Im Fall größerer Partikeleintragungen in den Filter kann es dazu kommen, dass bereits abgeschiedenen Partikelhäufchen kollabieren und weitertransportiert werden. Parallel dazu findet weiter der Transport und die Abscheidung von Einzelpartikeln statt. Auf diese Art könnte man ein Maximum in der Mitte des Filters erklären: es könnten tiefer in den Filter vorgedrungene Abscheidungen sein, die aufgrund ihrer Größe keine endgültige Lage einnehmen sondern immer einer Wahrscheinlichkeit unterliegen, weitertransportiert zu werden. Allerdings ist durch den begrenzten Beobachtungsbereich im Experiment keine definitive Interpretation der gemessenen Konzentrationsprofile möglich.

2. Starke radiale Abhängigkeit der Ablagerungen

Endliche Kugelschüttungen zeigen eine lokale Ordnung, wenn sie durch eine unverschiebliche ebene oder gleichmäßig gekrümmte Wand begrenzt werden. Diese Wandordnung drückt sich darin aus, dass die lokale Porengröße in der Nähe der Wände im Mittel größer ist als in der zufälligen Schüttung ohne Wand-einfluss. Auch kommt es in Wandnähe - ungefähr in den ersten fünf Kugella-gen - zu starken Schwankungen der Porosität, wenn diese dazu entlang des Umfangs konzentrischer Mittelpunktskreise integriert wird. Welche Rolle der Wand-einfluss für die Eigenschaften der gesamten Packung spielt, hängt von der Größe der Schüttung ab, genauer aus dem Verhältnis von Innendurchmesser der zylindrischen Zelle D_i und dem Durchmesser der Schüttungskugeln d_K . Im vorliegenden Fall ist dieses Verhältnis ca. 22, so dass sowohl das Verhalten im geordneten Bereich als auch im sogenannten *bulk* studiert werden kann. Die räumlich begrenzte Packung geeigneter Größe stellt somit für den Filtrationsfall eine natürliche Variation des Porenraumes dar, so dass an diesem dessen Auswirkungen auf die Partikelabscheidung studiert werden können. Die radiale Auswertung der Partikel zeigt hier starke Konzentrationsunterschiede für verschiedene Radien. Es wird deutlich, dass Filterbereiche mit lokal größerer Porendichte, wie es für den gesamten Bereich in Wandnähe gegeben ist, auch wesentlich besser als bulk-Bereiche mit Partikeln versorgt werden. Dass die Abscheidung in den Wandbereichen so hoch ist, ist vermutlich ein Zusammenspiel aus hoher Anströmung und geeignetem Ablagerungsmechanismus, der auch bei den im Wandbereich im Mittel erhöhten Geschwindigkeiten für stationäre Ablagerungen sorgt.

3. Starke Winkelabhängigkeit der Abscheidung am Einzelkollektor

In der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass die Ablagerung von Kolloiden an einem Einzelkollektor stark winkelabhängig ist. Dabei wird eine Verteilung beobachtet, die in ihren Grundzügen eine sinusförmige Gestalt hat, die der pro Winkel zur Verfügung stehenden Kugeloberfläche entspricht. Diese Sinusverteilung ist überlagert von einem starken Maximum der Abscheidung bei $\Theta = 150^\circ$ (Experiment 1) bzw. $\Theta = 155^\circ$ (Experiment 2). Betrachtet man die Verteilung der Kugel-Kugel-Kontakte, zeigt sich ein breites Maximum der Kugelkontakte auf der südlichen Hemisphäre der Kugel bei $\Theta = 135^\circ$. Es ist somit naheliegend anzunehmen, dass sich die Partikel auf der strömungszuge-wandten Seite des Kontaktpunktes ansammeln. Die Partikel gelangen auf-grund ihrer räumlichen Ausdehnung aber nicht bis direkt an den Kontakt-punkt, sondern treten weiter entfernt von diesem auf. Dadurch ergibt sich eine Winkeldifferenz, basierend auf einer einfachen 2D-Geometrie abgeschätzt

wurde. Die errechnete Winkeldifferenz beträgt mindestens $\Delta\theta = 15^\circ$ und könnte somit eine Erklärung für die Verschiebung der Winkelmaxima zwischen Kontaktpunktverteilung und Partikelverteilung bieten. Zudem konnte für die vorgestellten Experimente gezeigt werden, dass die Verteilung der Kontaktwinkel auch von den Eigenschaften der Partikelablagerungen (Größe, Form) abhängt. Dazu wurden aus der Menge aller Ablagerungen zwei Klassen näher untersucht. Die Winkelverteilung von kleinen, flachen Ablagerungen weist Ähnlichkeiten mit der Verteilung der Kugel-Kugel-Kontakte auf. Dies spricht dafür, dass sich an der trichterartigen Verjüngung des Porenraumes in der Nähe dieser Kontaktpunkte flache, oberflächennahe Abscheidungen bilden. Große, runde Ablagerungen hingegen treten fern von diesen Verjüngungen auf. Dies liegt vermutlich daran, dass sich diese aufgrund ihres Volumens nur in großen Porenräumen vorkommen können.

Die Ergebnisse dieser Arbeit besitzen aufgrund der nur eingeschränkt zur Verfügung stehenden Messzeit am Synchrotron einen eher exemplarischen Charakter, zeigen aber Wege auf, wie die Filtrationsforschung von der Bildgebung durch Röntgentomographie profitieren kann. Natürlich gibt es an dieser Stelle Raum zur Verbesserung bzw. das Bedürfnis nach einer Vergrößerung des betrachteten Parameterraumes. Die wichtigsten Vorschläge sind im Folgenden stichpunktartig zusammengefasst:

- **Parameterstudien:** Beim vorliegenden Experiment wurden zwei Experimentkonfigurationen untersucht, die sehr ähnliche Ergebnisse liefern. Das liegt vermutlich daran, dass bei der Variation der Strömungsgeschwindigkeiten zu geringe Unterschiede eingestellt wurden. Dies ist damit begründet, dass bei der Experimentplanung nur Fälle in betracht gezogen wurden, die mit großer Wahrscheinlichkeit eine ausreichend hohe Ablagerung zeigen würden. Hier wäre eine stärkere Variation der Leerrohrgeschwindigkeit und der insgesamt filtrierte Suspension angezeigt. Wichtig erscheint auch die Variation der Suspensionschemie, die in den betrachteten Ergebnissen konstant gehalten wurde.
- **Anpassung für Röhrenstrahlung:** Will man einen großen Parameterraum untersuchen, ist man beim vorliegenden Experiment gezwungen, die Bildgebung an eine Laboranlage anzupassen und Partikel zu verwenden, die weniger kostenintensiv sind. Da in einer Laboranlage durch die Kegelgeometrie des Röntgenstrahls sehr starke Vergrößerungen möglich sind, ist unter Umständen die Untersuchung von Kolloiden möglich, ohne eine differentielle Technik zu bemühen.
- **zeitliche Auflösung:** Ein wesentlicher Aspekt der Filtration wird von den beschriebenen Experimenten nicht abgedeckt: die zeitabhängige Entwicklung

der Abscheidung ist hier völlig unbekannt. Daher wäre eine Serie von Tomogrammen ideal, um zu studieren, wie sich die Partikelanlagerung mit der Zeit entwickelt. Beispielsweise könnte man untersuchen, in welcher Art und Weise die Abtragung von bereits abgeschiedenen Partikeln erfolgt oder welche Auswirkungen das Zusetzen des Filters mit Partikeln auf den Ablagerungsort weitere Partikel hat. Aus dem dynamischen Verhalten des Filters, und insbesondere den zeitlich veränderten Abscheideorten, könnte man dann konkrete Rückschlüsse auf eine optimale Filtergeometrie ziehen.

7 Anhang

Quellcode 1: Matlab Quellcode zur Bestimmung von Partikel-Kugel-Kontakten

```
1 kugeln=load('kugeln.dat');
2 partikel=load('partikel.dat');
3
4 kugeln_dim=size(kugeln);
5 partikel_dim=size(partikel);
6
7 kugeln_vol=kugeln(:,11);
8 kugeln_rad=nthroot(kugeln_vol*3/(4*pi),3);
9 kugeln_x=kugeln(:,2);
10 kugeln_y=kugeln(:,3);
11 kugeln_z=kugeln(:,4);
12
13 zuordnung=[];
14 schwellwert=10;
15
16 for partikel_iterator = 1:partikel_dim(1)
17
18     partikel_x=partikel(partikel_iterator,2);
19     partikel_y=partikel(partikel_iterator,3);
20     partikel_z=partikel(partikel_iterator,4);
21
22     partikel_pos_rad=sqrt((partikel(partikel_iterator,2)-587).^2+(partikel(
23         partikel_iterator,3)-572).^2);
24     partikel_vol=partikel(partikel_iterator,5);
25     partikel_circ=((partikel(partikel_iterator,15))^(3/2))/(6*sqrt(pi)*
26         partikel(partikel_iterator,5));
27     partikel_rad=nthroot(partikel_vol*3/(4*pi),3);
28
29     distanz=sqrt(power(kugeln_x-partikel_x,2)+power(kugeln_y-partikel_y
30         ,2)+power(kugeln_z-partikel_z,2));
31
32     durchdringung=distanz-kugeln_rad-partikel_rad-schwellwert;
33
34     kontakte=find(durchdringung<0.0);
35     kontakte_dim=size(kontakte);
36
37     for kontakte_iterator = 1:kontakte_dim(1)
```

```
36     kugel_id=kontakte(kontakte_iterator);
37     achsabstand=sqrt(power(partikel_x-kugeln_x(kugel_id),2)+power(
        partikel_y-kugeln_y(kugel_id),2));
38     hoehenunterschied=partikel_z-kugeln_z(kugel_id);
39
40     if hoehenunterschied > 0
41         winkel=atand(achsabstand/hoehenunterschied);
42
43     elseif hoehenunterschied < 0
44         winkel=180+atand(achsabstand/hoehenunterschied);
45
46     else
47         winkel=0;
48     end
49
50     zuordnung=[zuordnung;[partikel(partikel_iterator,1),kugeln(kugel_id
        ,1),distanz(kugel_id),durchdringung(kugel_id)],winkel,
        partikel_pos_rad, partikel_vol, partikel_circ, partikel_z];
51     end
52 end
53
54 dlmwrite('ergebnis.txt',zuordnung,'\t');
```

Literaturverzeichnis

- [1] Tipler, P.A. ; Llewellyn, R.A.: *Moderne Physik*. Oldenbourg Verlag, München, 2003
- [2] Jackson, John D.: *Klassische Elektrodynamik*. Gryter, 2002
- [3] <http://www.ipf.uni-stuttgart.de/lehre/online-skript/mehrelatom/charakterstrahlung.gif>
- [4] http://web.physik.rwth-aachen.de/~hebbeker/lectures/ph2_02/synchro1.gif
- [5] <http://www.xray.hmc.psu.edu/rci/ss1/ss12.html>
- [6] Hounsfield, G.: Computerized transverse axial scanning (tomography): Part 1. Description of system. In: *British Journal of Radiology* 46 (1973), S. 1016–1022
- [7] Kak, A.C. ; Slaney, M.: *Principles of computerized tomographic imaging*. SIAM, Philadelphia, 2001
- [8] *Stefan Häbler, private Kommunikation*
- [9] Samei, E. ; Flynn, M.J. ; Reimann, D.A.: A method for measuring the pre-sampled MTF of digital radiographic systems using an edge test device. In: *Medical Physics* 25 (1998), S. 102–113
- [10] http://www.mssl.ucl.ac.uk/www_solar/moses/moses-web/Pages/fourier-slice-theorem.jpg
- [11] Herman, G.T.: *Image Reconstruction from Projections*. Academic Press, New York, 1980
- [12] Sezgin, M. ; Sankur, B.: Survey over image thresholding techniques and quantitative performance evaluation. In: *Journal of Electronic Imaging* 13 (2004), Nr. 1, S. 146–168
- [13] Meyer, F. ; Beucher, S.: Morphological segmentation. In: *Journal of Visual Communication and Image Representation* 1 (1990), S. 21–46
- [14] Roth, K. ; Flühler, H. ; Vogel, H.J.: Wasserfluß und Transport gelöster Stoffe im Boden. In: *Physikalische Blätter* 55 (1999), S. 35–38
- [15] Stieß, M.: *Mechanische Verfahrenstechnik - Partikeltechnologie 1*. Springer Verlag, 2009

- [16] Tsakiroglou, C.D. ; Payatakes, A.C.: Mercury intrusion and retraction in model porous media. In: *Advances in Colloid and Interface Science* 75 (1998), Nr. 3, S. 215–253
- [17] Washburn, E.W.: The dynamics of capillary flow. In: *Physical Review* 17 (1921), Nr. 3, S. 273–283
- [18] http://www.hoki.ibp.fhg.de/wufi/grundl_poros_e.html
- [19] Maire, E. ; Colombo, P. ; Adrien, J. ; Babout, L. ; Biasetto, L.: Characterization of the morphology of cellular ceramics by 3D image processing of X-ray tomography. In: *Journal of the European Ceramic Society* 27 (2007), Nr. 4, S. 1973–1981
- [20] Ketcham, R.A. ; Carlson, W.D.: Acquisition, optimization and interpretation of X-ray computed tomographic imagery: applications to the geosciences. In: *Computers and Geosciences* 27 (2001), Nr. 4, S. 381–400
- [21] Hench, L. L. ; West, J. K.: The sol-gel process. In: *Chemical Reviews* 90 (1990), S. 33–72
- [22] Huang, L.K. ; Wang, L.J.: Image thresholding by minimizing the measures of fuzziness. In: *Pattern Recognition* 28 (1995), S. 41–45
- [23] Brauer, H.: *Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen*. Verlag Sauerländer, 1971
- [24] Hales, T.C.: A proof of the Kepler Conjecture. In: *Annals of Mathematics* 162 (2005), S. 1063–1183
- [25] Jaoshvili, A.: Experiments on the Random Packing of Tetrahedral Dice. In: *Physical Review Letters* 104 (2010), S. 185501
- [26] Scott, G.D.: Radial Distribution of the random close packing of equal spheres. In: *Nature* 194 (1962), S. 956–957
- [27] Sederman, A.J. ; Alexander, P. ; Gladden, L.F.: Structure of packed beds probed by Magnetic Resonance Imaging. In: *Powder Technology* 117 (2001), S. 255–269
- [28] Toit, C. G.: Radial variation in porosity in annular packed beds. In: *Nuclear Engineering and Design* 238 (2008), Nr. 11, S. 3073–3079. – 3rd International Conference on High Reactor Technology, Gauteng, SOUTH AFRICA, 2006

- [29] Reimann, J. ; Pieritz, R.A. ; Ferrero, C. ; Di Michiel, M. ; Rolli, R.: X-ray tomography investigations on pebble bed structures. In: *Fusion Engineering and Design* 83 (2008), Nr. 7-9, S. 1326–1330
- [30] Gasper, H.: Projektierung und Optimierung von Fest/Flüssig-Filtrationssystemen. In: *Chemie Ingenieur Technik* 76 (2004), Nr. 6, S. 746–750
- [31] Stieß, M.: *Mechanische Verfahrenstechnik 2*. Springer Verlag, 1997
- [32] Mappus, S. (Hrsg.): *Erde 2.0*. Springer Verlag, 2005
- [33] Sartor, M.: *Untersuchungen zum Einfluss elektrokinetischer Repulsionseffekte auf die Tiefenfiltration mit partikulären Schüttbetten*, Universität des Saarlandes, Diss., 2006. – 1–195 S.
- [34] Jegatheesan, V. ; Vigneswaran, S.: Deep Bed Filtration: Mathematical Models and Observations. In: *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 35 (2005), S. 515–569
- [35] Ives, K.J.: *The scientific basis of filtration*. Noordhoff, 1975
- [36] Elimelech, M. ; Gregory, J. ; Jia, X. ; Williams, R.A.: *Particle Deposition and Aggregation*. Butterworth Heinemann, 1998
- [37] Ryan, J.N. ; Elimelech, M.: Colloid mobilization and transport in groundwater. In: *Colloids and surfaces A: Physicochemical and engineering aspects* 107 (1996), S. 1–56
- [38] Ghidaglia, C. ; Arcangelis, L. de ; Hinch, J. ; Guazzelli, E.: Hydrodynamic interactions in deep bed filtration. In: *Physics of Fluids* 8 (1996), Nr. 1, S. 6–14
- [39] Yoon, J. S. ; Germaine, J. T. ; Culligan, P. J.: Visualization of particle behavior within a porous medium: Mechanisms for particle filtration and retardation during downward transport. In: *Water Resources Research* 42 (2006), Nr. 6, S. 16
- [40] Yoon, J.S.: *Discrete Particle Transport in Porous Media: Direct Observations of Physical Mechanisms Influencing Particle Behavior*, Massachusetts Institute of Technology, Diss., 2005
- [41] Sartor, M ; Kaschek, M. ; Mavrov, V. ; Chmiel, H.: Untersuchungen zum Einfluss elektrokinetischer Wechselwirkungen auf die Adsorptionsmechanismen bei der Tiefenfiltration. In: *Chemie Ingenieur Technik* 80 (2008), Nr. 6, S. 855–859

- [42] Derjaguin, B.V. ; Landau, L.D.: Theory of the Stability of Strongly Charged Lyophobic Sols and the Adhesion of Strongly Charged Particles in Solutions of Electrolytes. In: *Acta Physicochimica (UdSSR)* 14 (1941), S. 633–662.
- [43] Helmholtz, H.: Studien über die elektrischen Grenzschichten. In: *Annalen der Physik und Chemie* 2431 (879), S. 22–382
- [44] Stern, O.: Zur Theorie der elektrolytischen Doppelschicht. In: *Zeitschrift für Elektrochemie und angewandte physikalische Chemie* 30 (1924), S. 508–516
- [45] Tufenkji, N. ; Elimelech, M.: Breakdown of Colloid Filtration Theory: Role of the Secondary Energy Minimum and Surface Charge Heterogeneities. In: *Langmuir* 21 (2005), S. 841–852
- [46] *Michael Heiland, private Kommunikation*
- [47] Iwasaki, T.: Some notes on sand filtration. In: *Journal of the American Water Works Association* 29 (1937), S. 1591–1602
- [48] Bradford, S. A. ; Yates, S. R. ; Bettahar, M. ; Simunek, J.: Physical factors affecting the transport and fate of colloids in saturated porous media. In: *Water Resources Research* 38 (2002), Nr. 12, S. 63–1–63–12
- [49] Al-Abduwani, F. A. H. ; Farajzadeh, R. ; Broek, Wmgt van d. ; Currie, P. K. ; Zitha, P. L. J.: Filtration of micron-sized particles in granular media revealed by x-ray computed tomography. In: *Review of Scientific Instruments* 76 (2005), Nr. 10, S. 103704
- [50] Tufenkji, N. ; Elimelech, M.: Deviation from the Classical Colloid Filtration Theory in the Presence of Repulsive DLVO Interactions. In: *Langmuir* 20 (2004), S. 10818–10828
- [51] Li, X.Q. ; Lin, C.L. ; Miller, J.D. ; Johnson, W.P.: Pore-scale observation of microsphere deposition at grain-to-grain contacts over assemblage-scale porous media domains using X-ray microtomography. In: *ENVIRONMENTAL SCIENCE & TECHNOLOGY* 40 (2006), Nr. 12, S. 3762–3768
- [52] Yao, K.M. ; Habibian, M.T.: Water and Waste Water Filtration: Concepts and Applications. In: *Environmental Science and Technology* 5(11) (1971), S. 1105.
- [53] Rajagopalan, R. ; Tien, C.: Trajectory analysis of deep-bed filtration with the sphere-in-cell porous media model. In: *AIChE journal* 22 (1976), Nr. 3, S. 523–533

- [54] Tobiason, J.E. ; O'Melia, C.R.: Physicochemical Aspects of Particle Removal in Depth Filtration. In: *Journal of the American Water Works Association* 80 (1988), S. 54–64
- [55] Happel, J. ; Brenner, H.: *Low Reynolds number hydrodynamics: with special applications to particulate media*. Kluwer, Boston, 1983
- [56] Bradford, S.A. ; Torkzaban, S.: Colloid Transport and Retention in Unsaturated Porous Media: A Review of Interface-, Collector-, and Pore-Scale Processes and Models. In: *Vadose Zone Journal* 7 (2008), S. 667–681
- [57] Gaillard, J.F. ; Chen, C. ; Stonedahl, S.H. ; Lau, B. L. T. ; Keane, D. T. ; Packman, Aaron I.: Imaging of colloidal deposits in granular porous media by X-ray difference micro-tomography. In: *Geophysical Research Letters* 34 (2007), Nr. 18, S. L18404
- [58] Johnson, W.P. ; Pazmino, E. ; Ma, H.: Direct observations of colloid retention in granular media in the presence of energy barriers, and implications for inferred mechanisms from indirect observations. In: *Water Research* 44 (2010), S. 1158–1169
- [59] Xu, S. ; Gao, B. ; Saiers, J. E.: Straining of colloidal particles in saturated porous media. In: *Water Resources Research* 42 (2006), DEC 7, Nr. 12
- [60] Bradford, S.A. ; Bettahar, M. ; Simunek, J. ; Genuchten, M.T. van: Significance of straining in colloid deposition: Evidence and implications. In: *Water Resources Research* 42 (2006), S. W12S15
- [61] Brunke, O.: *Untersuchung der Strukturentwicklung von Aluminiumschäumen mit Röntgenmethoden*, Universität Bremen, Diss., 2005. – 1–151 S.
- [62] Mielnik, M. ; Saetran, L.: Selective seeding for micro-PIV. In: *Experiments in Fluids* 41 (2006), Nr. 2, S. 155–159
- [63] Donath, T.: *Quantitative X-ray Microtomography with Synchrotron Radiation*, Universität Hamburg, Diss., 2007
- [64] Tran, C.Q. ; Chantler, C.T. ; Barnea, Z. ; Jonge, M.D. ; Dhal, B.B. ; Chung, C.T.Y. ; Paterson, D. ; Wang, J.: Measurement of the x-ray mass attenuation coefficient of silver using x-ray-extended range technique. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 38 (2005), S. 89–107
- [65] <http://www.microparticles.de>

- [66] Rahn, H. ; Gomez-Mozilla, I. ; Jurgons, R.: Tomographic examination of magnetic nanoparticles used as drug carriers. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 321 (2009), S. 1517–1520
- [67] Bernhardt, R.: *Dreidimensionale Charakterisierung der Osseointegration von Titanimplantaten mittels Mikrocomputertomographie*, Technische Universität Dresden, Diss., Jan 2006. – 1–111 S.
- [68] Hasse, B. ; Rahn, H. ; Odenbach, S. ; Beckmann, F ; Reimers, W.: First Results of the DITO-Experiment at the HARWI II Beamline at GKSS/DESY. In: *Materials Science Forum* 571 (2008), S. 201
- [69] Beckmann, F. ; Dose, T. ; Lippmann, T. ; Lottermoser, L. ; Martins, R.V. ; Schreyer, A.: The New Materials Science Beamline HARWI-II at DESY. In: *Proceedings of SRI 06, AIP* 879 (2007), S. 746–749
- [70] Kelheim, PCO A.: www.pcoimaging.de
- [71] Gu, Y. ; Li, D.: The ζ -potential of glass surface in contact with aqueous solutions. In: *Journal of colloid and interface science* 226 (2000), Nr. 2, S. 328–339
- [72] Velasco, F. R. D.: Thresholding using the ISODATA clustering algorithm. In: *IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics* SMC-10 (1980), S. 771–774
- [73] Tien, C. ; Payatakes, A.C.: Advances in deep bed filtration. In: *AIChE journal* 25 (1979), Nr. 5, S. 737–759
- [74] Bey, O. ; Eigenberger, G.: Fluid flow through catalyst filled tubes. In: *Chemical Engineering Science* 52 (1997), Nr. 8, S. 1365–1376
- [75] Giese, M. ; Rottschäfer, K. ; Vortmeyer, D.: Measured and modeled superficial flow profiles in packed beds with liquid flow. In: *AIChE journal* 44 (1998), Nr. 2, S. 484–490
- [76] Waske, A ; Heiland, M ; Beckmann, F ; Odenbach, S.: Absorption Edge X-Ray Tomography for the Analysis of Particle Deposition in Packed Bed Filters. In: *AIP Proceedings of Porous Media and Its Applications in Science, Engineering and Industry* 1254 (2010), S. 187–192
- [77] Grassler, T. ; Wirth, K.E.: X-ray computer tomography — potential and limitation for the measurement of local solids distribution in circulating fluidized beds. In: *Chemical Engineering Journal* 77 (2000), S. 65–72

-
- [78] Ihme, F. ; Schmidt-Traub, H ; Brauer, H: Theoretische Untersuchung über die Umströmung und den Stoffübergang an Kugeln. In: *Chemie Ingenieur Technik* 5 (1972), S. 306–313
- [79] Reimann, J. ; Pieritz, R.A. ; Michiel, M. di ; Ferrero, C: Topology of Compressed Pebble Beds Determined by X-Ray Tomography / Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte FZKA 7120. 2005. – Forschungsbericht
- [80] Li, X. ; Li, D. Z. ans Z. Z. ans Zhang: Role of Low Flow and Backward Flow Zones on Colloid Transport in Porous Structures derived from Real Porous Media. In: *Environmental Science Technology* 44 (2010), S. 4936–4942
- [81] Jodrey, W.S. ; Tory, E.M.: Computer simulations of close random packing of equal spheres. In: *Phys. Rev. A* 32 (1985), S. 2347–2351
- [82] *Norbert Riefler, private Kommunikation*

Abbildungsverzeichnis

1.1	Schematischer Aufbau einer Röntgenröhre	2
1.2	Spektrum einer Röntgenröhre	3
1.3	Abstrahlcharakteristik eines bewegten Dipols	5
1.4	Röntgenaufnahme	7
1.5	Aufbau einer Tomographieanlage	8
1.6	Ortsraumaufnahme versus Frequenzraumdarstellung	9
1.7	Visualisierung der Datendichte im Fourier-Raum	11
1.8	Illustration des Fourier-Slice-Theorems	11
1.9	Rendering einer Silikonkapillaren	13
1.10	Optische Täuschung	14
1.11	Berechnen eines Bildprofils	16
1.12	Flüssigkeitsaufstieg in zylindrischen Silikonkanälen	16
1.13	2D Flüssigkeitsaufstieg: Veränderungen im Histogramm	17
1.14	Bildverarbeitungsstadien	19
2.1	Geschlossenporige und offenporige Systeme	23
2.2	Funktionsweise eines Quecksilberporosimeters	24
2.3	Gefriergeleier-Keramikprobe	26
2.4	Porengrößenverteilung einer porösen Keramik	27
2.5	Schematische Darstellung einer Kugelschüttung im Zylinder	30
2.6	Lokale Porosität als Funktion des bezogenen Wandabstandes	30
2.7	Ermittlung des Kugel-Kugel-Kontaktwinkels	32
2.8	Kugel-Kugel-Kontaktwinkel in der Literatur	33
3.1	Schematische Darstellung der Tiefen-, Oberflächen- und Querstrom- filtration	36
3.2	Verhalten von Druck und Partikelkonzentration des Filtrats	36
3.3	Antransportmechanismen bei der Tiefenfiltration	39
3.4	Die elektrische Doppelschicht	42
3.5	Verlauf der Gesamt-Wechselwirkungsenergie	44
3.6	Aufbau des Happel'schen Modells	46
3.7	Straining: Nachweis aus der Literatur 1	49
3.8	Straining: Nachweis aus der Literatur 2	50
4.1	Filtrationszelle für Voruntersuchungen	53
4.2	Rendering der leeren Schüttung in einem Vorversuchs-Aufbau.	53
4.3	Ablagerungsdetektion bei polychromatischer Strahlung	54

4.4	Absorptionskoeffizient von Silber	56
4.5	Differentielle Tomographie	57
4.6	Optische Komponenten der Tomographieanlage DiTo	58
4.7	Skizze der Filtrationszelle	61
4.8	Aufbau des Filtrations-Experiments	61
4.9	Einfluss von Elektrolytzugabe auf das Zetapotential	63
4.10	Ermittlung des typischen Porendurchmessers	66
5.1	Zirkularität der Schüttungskugeln	71
5.2	Rendering der Filterschüttung: Seitenansicht	73
5.3	Rendering der Filterschüttung: Draufsicht	73
5.4	Äquivalentdurchmesser der Schüttungskugeln	74
5.5	Radius- vs. Höhenposition der Schüttungskugeln	75
5.6	Projektion der Kugelzentren auf den Filterquerschnitt	75
5.7	Axialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 1.	77
5.8	Axialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 2.	77
5.9	Radialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 1.	80
5.10	Radialer Verlauf der Partikelkonzentration in Experiment 2.	80
5.11	Charakteristische Partikelablagerungen	81
5.12	Größe der Partikelabscheidungen	84
5.13	Partikelpositionen im Filterquerschnitt, Experiment 1	86
5.14	Partikelpositionen im Filterquerschnitt, Experiment 2	86
5.15	Partikelpositionen im Filteranschnitt, Experiment 1	87
5.16	Partikelpositionen im Filteranschnitt, Experiment 2	87
5.17	Schematische Darstellung der Partikelzuordnung	89
5.18	Distanzverteilung Partikel-Kugel	90
5.19	Winkellage der Partikelablagerungen	92
5.20	Distanzverteilung Kugel-Kugel	93
5.21	Winkellage der Kugel-Kugel-Kontakte	94
5.22	Kugelkontakte: Vergleich Literatur	95
5.23	Schemazeichnung zum Abstand zweier Kugeloberflächen	96
5.24	Verteilung der Kontaktwinkel: kleine, flächige Partikelablagerungen	98
5.25	Verteilung der Kontaktwinkel: große, runde Partikelablagerungen	98
5.26	Vergleich der Winkelverteilungen mit Simulationsergebnissen	101
5.27	Vergleich der Winkelverteilungen mit Simulationsergebnissen	101

Tabellenverzeichnis

2.1	Parameter der Bildverarbeitung bei Keramik	27
2.2	Porosität und Koordinationszahl verschiedener Kugelpackungen . . .	29
4.1	Röntgenabsorptionseigenschaften von Silber und Gold	55
4.2	Vergleich der in DiTo genutzten Kameratypen	59
4.3	Zusammensetzung der Partikelsuspension	62
4.4	Parameter der Filtrations-Experimente	64
5.1	Zirkularitäten verschiedener Körper	71
5.2	Winkeldifferenz zwischen Kontaktwinkel und Abscheidewinkel	97

Quellcodeverzeichnis

1	Matlab Quellcode zur Bestimmung von Partikel-Kugel-Kontakten	I
---	--	---