

Datengetriebene Analyse der strukturabhängigen Flüssigkeitsausbreitung in porösen Membranen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)
von der KIT-Fakultät für Maschinenbau des
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte
Dissertation

von

Willfried Kunz, M.Sc.

Tag der mündlichen Prüfung: 05.07.2024

Referentin: Prof. Dr. rer. nat. Britta Nestler

Korreferentin: Prof. Dr.-Ing. Jennifer Niessner

Kurzfassung

Die Nachfrage nach schnellen, einfach anzuwendenden medizinischen Tests ist in den letzten Jahren enorm gestiegen. Insbesondere Lateral-Flow-Tests (LFTs), wie die weit verbreiteten COVID-19-Schnelltests oder der klassische Schwangerschaftstest, bieten aufgrund ihrer Benutzerfreundlichkeit und Kosteneffizienz ein großes Potenzial. Das Funktionsprinzip von LFTs basiert auf dem kapillaren Flüssigkeitstransport einer Probenflüssigkeit zu einer Testlinie in einer offenporigen Polymermembran. Um die Testqualität zu optimieren und eine schnelle Anpassung für neuartige Biomarker sicherzustellen, ist es notwendig, den Einfluss der mikrostrukturellen Eigenschaften der porösen Membranen (im Bereich von Mikrometern) auf das makroskopische Benetzungsverhalten (im Zentimeterbereich) zu erforschen.

Um die Strukturabhängigkeit der Flüssigkeitsausbreitung zu untersuchen, wird in dieser Arbeit ein datengetriebener, skalenübergreifender Ansatz verfolgt. Zunächst werden auf der Mikroskala digitale Abbilder poröser Membranstrukturen generiert. Diese digitalen Zwillinge können sowohl synthetische Strukturen mit beliebigen Eigenschaften als auch Abbilder echter Membranstrukturen umfassen, die mithilfe bildgebender Verfahren wie der Computertomographie oder der Konfokalmikroskopie erstellt werden. Anschließend erfolgt eine computergestützte Charakterisierung der digitalen Zwillinge, um effektive Strukturparameter zu extrahieren. Dazu wird unter anderem eine Methode zur Extraktion eines Porennetzwerkmodells (PNM) vorgestellt, welches den Porenraum durch einfache geometrische Körper, wie Kugeln und Zylinder, abstrahiert. Das PNM ermöglicht eine recheneffiziente Strömungsanalyse in hochporösen Strukturen, wobei speziell der Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf das Strömungsverhalten analysiert wird.

Um das Verhalten der Flüssigkeitsausbreitung, bekannt als Wicking, skalenübergreifend anhand der auf der Mikroskala ermittelten Strukturparameter vorherzusagen zu können, wird ein makroskopisches Wickingmodell vorgestellt. Dieses Modell ermöglicht es, basierend auf den Eigenschaften der Mikrostruktur, die Wickingzeit und -geschwindigkeit zu modellieren. Ein besonderer Fokus wird dabei auf die Modellierung des Kapillardrucks gelegt, wobei eine innovative Methode zur Berechnung eines effektiven Porenradius präsentiert wird, der diesen Kapillardruck abbilden kann. Diese Methode stützt sich auf die zweiphasige Simulation eines Benetzungsprozesses innerhalb der vollständig aufgelösten Membranstruktur unter Einsatz der Phasenfeldmethode. Zur Validierung der Methode werden die Simulationsergebnisse mit experimentellen Daten abgeglichen. Im weiteren Verlauf erfolgt die datengetriebene Ableitung universeller Funktionen zur Beschreibung der Wechselwirkungen zwischen den effektiven Strukturparametern. Dies wird durch die Generierung und Auswertung einer synthetischen Membrandatenbank umgesetzt. Dabei werden die hergeleiteten strukturellen Zusammenhänge realen Membranproben gegenübergestellt. Durch die Integration der ermittelten Zusammenhänge in das makroskopische Wickingmodell lässt sich der strukturelle Einfluss auf das Wickingverhalten in porösen Membranen detailliert analysieren. Zum Abschluss wird der strukturelle Einfluss auf die Präparation der Test- und Kontrolllinie in einem LFT erforscht, indem experimentell die Verbindung zwischen der Ausbreitung einer auf die Membran aufgetragenen Flüssigkeit und der zugrundeliegenden Membranstruktur hergestellt wird. Die Untersuchung konzentriert sich dabei auf die Erzeugung und Analyse eines dreidimensionalen digitalen Abbilds, das sowohl die Flüssigkeitsausbreitung als auch die dazugehörige Membranstruktur erfasst.

Zusammenfassend verknüpft die vorliegende Arbeit datengetriebene Methoden mit skalenübergreifenden Ansätzen, um tiefere Einblicke in die Beeinflussung der Flüssigkeitsbewegung durch die Mikrostruktur poröser Diagnostikmembranen zu gewähren. Ein solches Verständnis ist entscheidend, um die Leistungsfähigkeit von Lateral-Flow-Tests weiter zu verbessern.

Abstract

The demand for quick and easy-to-use medical tests has increased enormously in recent years. Especially for lateral flow tests (LFTs) such as the widely used COVID-19 rapid tests or the classic pregnancy test, the advantages are obvious, due to their ease of use and cost efficiency. The functional principle of LFTs is based on the capillary-driven liquid transport of a sample liquid to a test line in an open-pored polymer membrane. In order to optimize the test quality and ensure rapid adaptation to novel biomarkers, it is essential to analyze how the microstructural properties of the porous membrane (in the micrometer range) affect the macroscopic wetting behavior (in the centimeter range).

To investigate the structure dependence of fluid propagation in porous membranes, this study adopts a data-driven, multiscale approach. Initially, digital models of porous membrane structures are generated on the microscale. These digital twins can represent i) synthetic structures with arbitrary properties and ii) models of real membrane structures created using imaging techniques such as computed tomography or confocal microscopy. This is followed by a computer-aided characterization of the digital twins to extract effective structural parameters. Among others, a method for extracting a pore network model (PNM) is introduced, which abstracts the pore space using simplified shapes such as spheres and cylinders. The PNM enables a computationally efficient flow analysis in highly porous structures, with a particular focus in this work on analyzing the effects of structural anisotropy on flow behavior.

A macroscopic wicking model is introduced to predict the behavior of the fluid spreading in a porous membrane, known as wicking, over multiple length scales using structural parameters determined at the microscale. This model allows modeling the wicking time and wicking speed based on the properties of the

microstructure. A special focus is placed on the modeling of capillary pressure, whereby an innovative method for the calculation of an effective pore radius is introduced, which can map this capillary pressure. This method relies on the two-phase simulation of a wetting process within the fully resolved membrane structure, using the phase-field method. To validate the method, simulation results are aligned with experimental data. Subsequently, a data-driven derivation of universal functions to describe the interactions between effective structural parameters is performed by creating and analyzing a synthetic membrane database. The derived structural linkages are compared with real membrane samples. By integrating the identified relationships into the macroscopic wicking model, the structural influence on the wicking behavior in porous membranes can be described in detail. Finally, the structural influence on the preparation of the test and control line in an LFT is analyzed by experimentally establishing the connection between the propagation of a liquid applied to the membrane and the underlying membrane structure. The study focuses on the creation and analysis of three-dimensional digital twins that capture both the fluid propagation and the associated membrane structure.

In summary, this work combines data-driven methods with multiscale approaches to deepen our understanding of how the microstructure of porous diagnostic membranes affects fluid movement. Such understanding is essential for further improving the performance of lateral flow tests.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	i
Abstract	iii
1 Einleitung	1
1.1 Einordnung und Motivation	1
1.2 Zielsetzung	4
1.3 Gliederung der Arbeit	5
2 Theoretische Grundlagen	7
2.1 Diagnostischer Schnelltest	7
2.1.1 Aufbau und Funktionsweise	7
2.1.2 Herstellung der Diagnostikmembran	9
2.1.3 Charakterisierende Kenngrößen poröser Membranen	11
2.2 Flüssigkeitsbenetzung in porösen Membranen	18
2.2.1 Oberflächenspannung	19
2.2.2 Kontinuitätsgleichung	20
2.2.3 Youngsche Gleichung	21
2.2.4 Young-Laplace Gleichung	22
2.2.5 1-D Impulsbilanz in einer zylindrischen Kapillare	24
2.2.6 Makroskopische Wickingmodelle	25
2.3 Porennetzwerkmodell zur Abstraktion poröser Strukturen	28
2.4 Bildbearbeitungsalgorithmen	29
2.4.1 Wasserscheidentransformation zur Bildsegmentierung	30
2.4.2 Canny-Algorithmus zur Kantenerkennung	32

2.4.3	Closing-Algorithmus zur Schließung von Bildlücken . . .	33
3	Generierung digitaler Zwillinge poröser Membranen	35
3.1	Rekonstruktion realer Membranstrukturen	35
3.1.1	Konfokale Laser-Scanning Mikroskopie (CLSM)	35
3.1.2	Von der Mikroskopie zum digitalen Zwilling	38
3.1.3	Verwendete Membrandatensätze	40
3.2	Algorithmusbasierte Generierung	41
3.2.1	Basierend auf einer Voronoizerlegung	42
3.2.2	Basierend auf einer Wasserscheidentransformation	43
4	Methoden zur Strukturanalyse	51
4.1	Computergestützte Charakterisierung	51
4.1.1	Porosität	52
4.1.2	Geometrischer Poren- und Stegradius	53
4.1.3	Strukturelle Anisotropie	54
4.1.4	Spezifische Oberfläche	58
4.1.5	Tortuosität	60
4.1.6	Permeabilität	61
4.2	Experimentelle Charakterisierung	64
4.2.1	Porositätsbestimmung durch die Wiegemethode	64
4.2.2	Wickingexperiment	65
4.2.3	Kapillarflussporometrie	66
5	Porennetzwerkmodellierung zur Strömungsanalyse	69
5.1	Stand der Forschung	70
5.2	Extraktion eines Porennetzwerkmodells	71
5.2.1	Segmentierung des Porenraums	72
5.2.2	Extraktion der Porennetzwerkeigenschaften	73
5.2.3	Validierung der Extraktion	78
5.3	Methoden zur Berechnung des Porenradius im Vergleich	81
5.3.1	Anisotrope synthetische Membranstrukturen	83
5.3.2	Reale Membranstrukturen	87

5.4	Einphasige Strömung in Porennetzwerkmodellen	89
5.4.1	Validierung	90
5.4.2	Anisotrope synthetische Membranstrukturen	95
5.4.3	Reale Membranstrukturen	99
5.5	Zusammenfassung und Diskussion	104
6	Struktureller Einfluss auf das Wickingverhalten	107
6.1	Stand der Forschung	107
6.2	Makroskopisches Wickingmodell	110
6.3	Richtungsabhängiger effektiver Porenradius	112
6.3.1	Phasenfeldmodellierung der Benetzung	113
6.3.2	Modellsetup und Validierung in vereinfachten Strukturen	120
6.3.3	Validierung mit realen Membranstrukturen	122
6.4	Analyse der Benetzungseigenschaften	127
6.5	Datengetriebene Analyse struktureller Zusammenhänge	132
6.5.1	Generierung Membrandatensatz	132
6.5.2	Auswertung Membrandatensatz	135
6.5.3	Geometrischer Porenradius	136
6.5.4	Spezifische Oberfläche	138
6.5.5	Tortuosität	140
6.5.6	Permeabilität	142
6.5.7	Effektiver Porenradius	144
6.6	Datengetriebene Struktur-Wicking Analyse	146
6.7	Zusammenfassung und Diskussion	147
7	Struktureller Einfluss auf die Test- und Kontrolllinie	151
7.1	Stand der Forschung	152
7.2	Experimentelle Mikroskopie und Analyse der Tropfenausbreitung	153
7.2.1	Experimenteller Aufbau	153
7.2.2	Computergestützte Auswertung	155
7.2.3	Auswahl experimenteller Datensätze	157
7.2.4	Analyse der anisotropen Tropfenausbreitung	159
7.3	Experimentelle Mikroskopie und Analyse des Linienauftrags . .	161

7.3.1	Experimenteller Aufbau	161
7.3.2	Computergestützte Auswertung	163
7.3.3	Analyse des richtungsabhängigen Linienauftrags	165
7.3.4	Experimentelle Struktur-Linienbreite Analyse	167
7.4	Zusammenfassung und Diskussion	169
8	Zusammenfassung und Ausblick	173
8.1	Zusammenfassung	173
8.2	Ausblick	175
	Literaturverzeichnis	179
	Abbildungsverzeichnis	193
	Tabellenverzeichnis	213
A	Anhang	217

1 Einleitung

1.1 Einordnung und Motivation

In der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts galt Porosität im Bereich des Ingenieurwesens noch als unerwünschtes Phänomen, das es möglichst zu verhindern galt [1]. Doch mit dem Fortschreiten der Zeit hat sich diese Perspektive grundlegend gewandelt. In den vergangenen Jahrzehnten haben sich ein vielseitiger und dynamisch wachsender Industriezweig sowie ein lebhafter Forschungsbe-
reich etabliert, die sich beide intensiv mit der Erforschung und praktischen Anwendung poröser Strukturen beschäftigen [2]. Diese Entwicklung spiegelt sich in einer breiten Palette von Anwendungen wider, die von der Filtration mittels poröser Medien über den Einsatz in Batterien und Brennstoffzellen, im Leichtbau, bei der Schalldämmung und Wärmeisolierung bis hin zu Anwendungen in der medizinischen Diagnostik reichen. Dabei lassen sich poröse Medien grundsätzlich in geschlossenporige und offenporige Strukturen unterteilen, wobei sich die offenporigen Systeme dadurch auszeichnen, dass der Porenraum teilweise oder komplett zusammenhängend ist. Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der datengetriebenen Analyse offenporiger hochporöser Polymermembranen, die speziell in medizinischen Schnelltests, sogenannten Lateral-Flow-Tests (LFTs), eingesetzt werden. Ein schematischer LFT ist in Abbildung 1.1a) dargestellt. LFTs bieten eine hochgradig kosteneffiziente, autonome, schnelle und benutzerfreundliche Lösung für die patientennahe medizinische Diagnostik, um Krankheitserreger oder andere Biomarker zu erkennen. Das Funktionsprinzip dieser Tests gründet auf der Auftragung einer Probe, wie Urin oder Speichel, auf einen

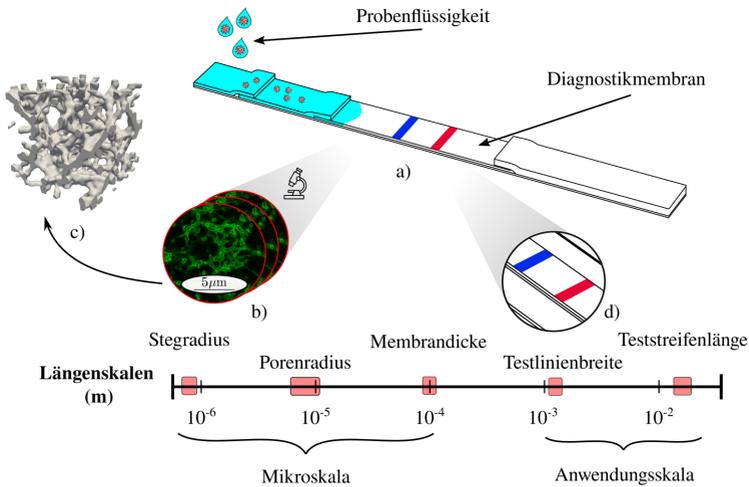


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung des in a) gezeigten Lateral-Flow-Tests inklusive der zugehörigen Längenskalen. Die Mikroskala erfasst die Membranstruktur, die in b) mikroskopisch dargestellt und in c) als dreidimensionales digitales Modell präsentiert wird. Die Anwendungsskala umfasst den Bereich der Flüssigkeitsausbreitung sowie den in Abbildung d) hervorgehobenen Testbereich.

Teststreifen. Anschließend wird die Probe durch Kapillarkräfte zu einem Reaktionsbereich geleitet, in dem eine biochemische Reaktion mit der vorab präparierten Test- und Kontrolllinie stattfindet. Das Resultat dieser Reaktion manifestiert sich in einem Farbsignal, welches entsprechend interpretiert werden kann. Die Qualität und Deutlichkeit dieses Signals wird durch die sogenannte Sensitivität charakterisiert [3]. Dieses bewährte Verfahren findet bereits seit Jahrzehnten Anwendung, zum Beispiel in Schwangerschaftstests für den Heimgebrauch oder in Drogentests. Insbesondere während der COVID-19-Pandemie haben sich die Vorteile, speziell ihre einfache Handhabung und direkte Anwendbarkeit, von LFTs als entscheidend erwiesen. Sie waren ein wichtiges Instrument zur zeitnahen Erkennung lokaler Infektionsausbrüche und trugen somit wesentlich zur Unterbrechung von Infektionsketten bei.

Die sogenannte Diagnostikmembran bildet das Kernstück eines Lateral-Flow-Tests. Auf dieser befindet sich nicht nur der Testbereich, sondern sie ermöglicht ebenso den autarken kapillargetriebenen Transport der Probenflüssigkeit. Sie ist

eine poröse Polymermembran, zumeist auf Basis von Cellulosenitrat (CN), die durch das gezielte Einbringen von Poren in eine dichte Polymermatrix kostengünstig hergestellt werden kann. Ihre Eignung beruht unter anderem auf der Fähigkeit zur Interaktion mit den drei wesentlichen Klassen von Biomolekülen (Proteinen, DNA und RNA), was die Immobilisierung von Proteinen auf der intrinsischen Membranoberfläche in Form der Test- und Kontrolllinie ermöglicht. Die Sensitivität der Test- und Kontrolllinien sowie der Flüssigkeitstransport hängen dabei maßgeblich von der strukturellen Beschaffenheit der Membran ab. In diesem Zusammenhang treten zwei gegensätzliche Mechanismen in Wettbewerb: Zum einen ist zugunsten der Benutzerfreundlichkeit und Kundenzufriedenheit eine zügige Testdurchführung, sprich ein rascher Transport der Probenflüssigkeit, erstrebenswert. Zum anderen beeinflusst die Geschwindigkeit, mit der die Flüssigkeit an der Test- und Kontrolllinie vorbeifließt, direkt die Sensitivität des Tests. Eine geringere Fließgeschwindigkeit lässt mehr Zeit für die biochemische Reaktion, was tendenziell zu einer erhöhten Sensitivität führt. Um hierbei den optimalen Bereich zu finden und gleichzeitig eine schnelle Anpassung an neue Krankheitserreger zu ermöglichen, ist ein fundiertes Verständnis der zugrundeliegenden Mechanismen erforderlich. Eine quantifizierbare Charakterisierung der Membranstruktur ist dabei unerlässlich, um sowohl die strukturellen Zusammenhänge zu erfassen als auch deren Einfluss auf die angesprochenen Prozesse zu verstehen. Experimentelle Untersuchungen können dies teilweise ermöglichen, sind jedoch kostspielig und beschränken sich oft auf die Analyse der Prozesse auf der Anwendungsskala, ohne dabei Einblicke auf der in Abbildung 1.1b) gezeigten strukturellen Mikroskala zu ermöglichen. Eine umfassende Analyse ist jedoch mittels computergestützter Methoden realisierbar. Diese Verfahren basieren auf der Erstellung digitaler Zwillinge der Membranstruktur im Mikrometerbereich, wie in Abbildung 1.1c) veranschaulicht, welche anschließend kostengünstig analysiert und charakterisiert werden können. Mittels multiskaliger Modellierungsansätze lassen sich die auf der Mikroskala charakterisierten Strukturparameter heranziehen, um den Flüssigkeitstransport auf der in Abbildung 1.1d) illustrierten Anwendungsskala vorherzusagen. Zusätzlich ermöglichen diese Ansätze eine detaillierte Analyse des Einflusses der Mikrostruktur auf den Transportprozess.

1.2 Zielsetzung

Diese Arbeit wurde mit dem Ziel verfasst, ein tieferes Verständnis der mikrostrukturellen Auswirkungen poröser Diagnostikmembranen auf das Verhalten der Flüssigkeitsausbreitung in diesen zu entwickeln. Zu diesem Zweck werden digitale Modelle, sogenannte digitale Zwillinge, von realen porösen Membranstrukturen und synthetischen porösen Strukturen auf der Mikroskala erstellt und mit fortschrittlichen, datengetriebenen Methoden umfassend analysiert.

Zunächst werden durch die Erzeugung eines Porennetzwerkmodells die Auswirkungen einer strukturellen Anisotropie auf die Flüssigkeitsausbreitung untersucht. Anschließend wird durch die Erstellung und Analyse zahlreicher synthetischer Membranstrukturen die Wechselwirkung zwischen Strukturmerkmalen auf der Mikroskala erforscht, mit dem Ziel, allgemeingültige Funktionen zu entwickeln, die diese Zusammenhänge abbilden. Die identifizierten strukturellen Zusammenhänge werden daraufhin genutzt, um die Flüssigkeitsausbreitung auf der Anwendungsskala zu modellieren. Der Fokus liegt dabei auf der Prognose der Ausbreitungsdauer und -geschwindigkeit in Abhängigkeit von strukturellen Eigenschaften.

Um die Präparation der Test- und Kontrolllinie genauer zu untersuchen, wird die experimentelle Auftragung von Tropfen und Linien auf die Membranoberfläche analysiert. Hierbei konzentriert sich die Untersuchung auf den Zusammenhang zwischen den strukturellen Eigenschaften der Membran und dem Ausbreitungsverhalten der aufgetragenen Flüssigkeit, insbesondere im Hinblick auf die resultierende Linienbreite. Zu diesem Zweck werden digitale Modelle von der aufgetragenen Flüssigkeit, aber auch der entsprechenden Membranstruktur erstellt und computergestützt analysiert. Darüber hinaus wird das beobachtete Verhalten mit den zuvor definierten strukturellen Zusammenhängen verknüpft, um ein tieferes Verständnis der zugrundeliegenden Mechanismen zu erlangen.

1.3 Gliederung der Arbeit

Die vorliegende Arbeit lässt sich in die fünf Abschnitte i) theoretische Grundlagen, ii) Generierung digitaler Zwillinge, iii) Methoden zur Strukturanalyse poröser Strukturen, iv) Porennetzwerkmodellierung zur Strömungsanalyse und v) struktureller Einfluss auf die Flüssigkeitsausbreitung unterteilen.

Theoretische Grundlagen: Zu Beginn werden in Kapitel 2 die für diese Arbeit relevanten Grundlagen dargelegt. Es werden zunächst die Funktionsweise von Lateral-Flow-Tests und die wichtigsten charakteristischen Eigenschaften poröser Diagnostikmembranen erörtert. Darauf folgend werden die physikalischen Prinzipien der kapillargetriebenen Flüssigkeitsausbreitung in porösen Membranen betrachtet. Abschließend werden die Grundlagen der Porennetzwerkmodellierung sowie einige für diese Arbeit wesentliche Bildbearbeitungsalgorithmen vorgestellt.

Generierung digitaler Zwillinge: Kapitel 3 präsentiert die in dieser Arbeit eingesetzten Algorithmen zur Erstellung digitaler Modelle poröser Membranstrukturen. Dabei werden zwei Methoden zur Erzeugung synthetischer Strukturen vorgestellt, und eine dritte Methode, die die Rekonstruktion realer Membranstrukturen mithilfe bildgebender Verfahren beschreibt.

Methoden zur Strukturanalyse: Kapitel 4 beginnt mit der Vorstellung der computergestützten Verfahren zur Analyse digitaler Zwillinge poröser Strukturen. Darauf folgt eine detaillierte Erläuterung der relevanten experimentellen Charakterisierungsmethoden.

Porennetzwerkmodellierung zur Strömungsanalyse: Zu Beginn des Kapitels 5 wird eine Methode zur Extraktion eines Porennetzwerkmodells (PNM) erläutert. Im Anschluss wird das PNM genutzt, um drei verschiedene Methoden zur Berechnung des geometrischen Porenradius miteinander zu vergleichen. Dabei werden anhand von Strukturen mit einer strukturellen Anisotropie die spezifischen Vor- und Nachteile jeder Methode herausgearbeitet. Abschließend kommt das PNM zum Einsatz, um durch einphasige Strömungssimulationen den Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf das Strömungsverhalten zu analysieren.

Struktureller Einfluss auf die Flüssigkeitsausbreitung: In den Kapiteln 6 und 7 liegt der Fokus auf der Frage, inwiefern mikrostrukturelle Eigenschaften die makroskopische Flüssigkeitsausbreitung in porösen Membranen beeinflussen. Kapitel 6 widmet sich dabei dem Wickingverhalten, also dem kapillargetriebenen Flüssigkeitstransport. Durch die Erstellung einer umfangreichen Strukturdatenbank werden zunächst allgemeine strukturelle Zusammenhänge herausgearbeitet. Diese Beziehungen dienen daraufhin als Grundlage, um die Wickingzeit und -geschwindigkeit basierend auf strukturellen Parametern vorherzusagen. Kapitel 7 untersucht den mikrostrukturellen Einfluss auf die Test- und Kontrolllinie, indem experimentell eine Verbindung zwischen der Ausbreitung einer auf die Membran aufgetragenen Flüssigkeit und der entsprechenden Membranstruktur hergestellt wird.

Zusammenfassung und Ausblick: Abschließend werden die wichtigsten Erkenntnisse zusammengefasst, und es wird ein Ausblick auf weiterführende Forschungsfragen gegeben.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Diagnostischer Schnelltest

Im Point-of-Care-Testing (POCT) sind medizinische Schnelltests wichtige diagnostische Werkzeuge zur schnellen und einfachen Erfassung von Krankheitserregern oder Biomarkern im Körper. Diese Tests basieren auf verschiedenen immunologischen Prinzipien und sind darauf ausgelegt, in kurzer Zeit und mit minimalem Aufwand quantitative oder qualitative Ergebnisse zu liefern. Zu den mitunter bekanntesten POCTs zählen die sogenannten Lateral-Flow-Tests (LFTs). LFTs sind eine weit verbreitete Art von Schnelltests, die sich durch ihre Einfachheit und Schnelligkeit auszeichnen. Sie finden Anwendung in einer Vielzahl medizinischer Bereiche, insbesondere bei der Diagnose von Infektionskrankheiten wie HIV, Hepatitis, Dengue-Fieber und auch COVID-19 [4] sowie bei dem im Heimgebrauch weit verbreiteten Schwangerschaftstest.

2.1.1 Aufbau und Funktionsweise

Der Aufbau eines Lateral-Flow-Tests besteht aus vier Komponenten: i) dem Aufnahmepapier, ii) dem Reagenzvlies, iii) der porösen Diagnostikmembran und iv) dem Aufnahmevlies. Alle Komponenten weisen eine poröse Mikrostruktur auf, wobei die Komponenten in der zuvor aufgezählten Reihenfolge überlappend aneinandergereiht verklebt werden, wie in Abbildung 2.1 dargestellt. Diese Anordnung ermöglicht einen kapillargetriebenen Transport, bekannt als Wicking, der Probenflüssigkeit durch den Teststreifen. Der Testablauf beruht auf folgenden Schritten. Zunächst wird eine kleine Menge der zu testenden Flüssigkeit oder des

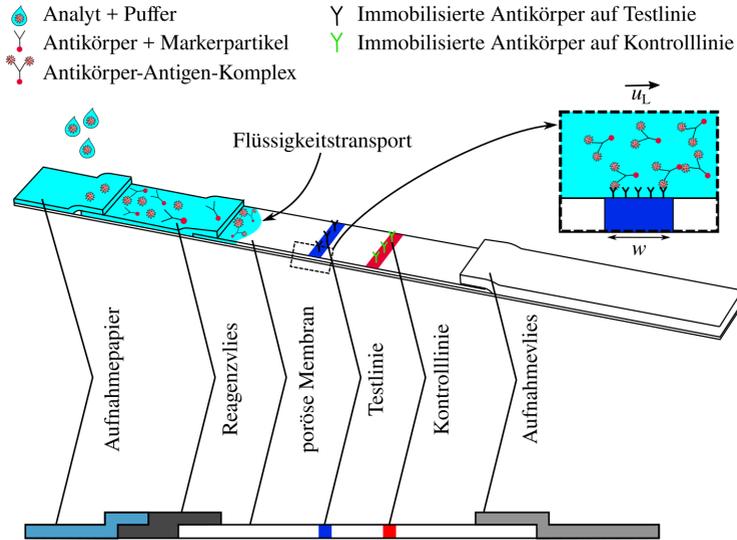


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Lateral-Flow-Tests. Die einzelnen Komponenten und die ablaufenden chemischen Reaktionen werden dabei hervorgehoben.

Biomaterials, z. B. Blut, Urin oder Speichel, auf das Aufnahmepapier des Teststreifens aufgetragen oder getropft. Die Probenflüssigkeit wird anschließend rein kapillargetrieben in das Reagenzvlies transportiert, wodurch das zuvor immobilisierte Antikörperkonjugat, bestehend aus Antikörpern und Markerpartikeln, remobilisiert wird. Bei den Markerpartikeln kann es sich beispielsweise um kolloidale Gold- oder fluoreszierende Latexpartikel handeln [4]. Bei Vorhandensein des nachzuweisenden Analyts bilden sich Antikörper-Antigen-Komplexe. Diese Komplexe, sowie nicht gebundene Konjugate, gelangen durch den fortlaufenden kapillaren Flüssigkeitstransport in die Diagnostikmembran und werden zu einem Testbereich transportiert. Der Testbereich enthält zunächst eine Testlinie, auf der zuvor immobilisierte Antikörperbanden vorhanden sind. Ist dies der Fall, binden die Antikörper-Antigen-Komplexe an dieser Linie und erzeugen ein Farbsignal. Anschließend fließt die Probenflüssigkeit an einer Kontrolllinie vorbei, auf der zuvor ein sekundärer Antikörper immobilisiert wurde, der spezifisch für

die Antikörperkonjugate aus dem Reagenzvlies ausgelegt ist. Sobald diese die Kontrolllinie passieren, werden sie dort gebunden, was ebenfalls ein Farbsignal erzeugt. Die Kontrolllinie dient zur Überprüfung der grundlegenden Funktionsfähigkeit des Tests und sollte immer ein Signal erzeugen. Falls dies nicht der Fall ist, wird der Test als ungültig betrachtet. Schließlich wird die Probenflüssigkeit vom Aufnahmevlies aufgefangen, das aufgrund seines hohen Absorptionsvermögens einen ausreichenden Durchfluss und das Auffangen der Probenflüssigkeit gewährleistet.

2.1.2 Herstellung der Diagnostikmembran

Die bereits im vorherigen Abschnitt erwähnte Diagnostikmembran stellt die entscheidende Komponente eines Lateral-Flow-Tests dar. Diese Membran, bestehend aus Cellulosenitrat (CN), zeichnet sich durch ihre hervorragende Bindekapazität [3, 5] aus, die eine effektive Immobilisierung der Antikörper im Testbereich ermöglicht. Zudem ist ihre offenporige, hochporöse Struktur besonders gut geeignet für den kapillargetriebenen Flüssigkeitstransport. Typischerweise werden CN-Membranen mit nominellen Porendurchmessern zwischen 3 μm und 20 μm [6] verwendet, was sie nach der IUPAC-Terminologie zu den makroporösen Membranen zählt. Die *International Union of Pure and Applied Chemistry* (IUPAC) klassifiziert poröse Strukturen je nach Porengröße in drei Kategorien: Mikroporen (< 2 nm), Mesoporen (zwischen 2 nm und 50 nm) und Makroporen (> 50 nm) [7].

Die Herstellung von CN-Membranen basiert auf dem Phaseninversionsprozess. Im industriellen Bereich werden dabei verschiedene Verfahren eingesetzt, darunter das Fällbadverfahren und das Verdunstungsverfahren [8]. Beide basieren auf dem Prinzip der Mischphasenthermodynamik. Der Ausgangspunkt des Phaseninversionsprozesses ist eine Polymerlösung, die Cellulosenitrat und ein Lösungsmittel enthält und thermodynamisch stabil ist. Durch die Zugabe eines Nichtlösungsmittels wird die Lösung entmischt, wodurch sie in eine polymerreiche Phase und eine polymerarme Phase übergeht, was als flüssig-flüssig-Entmischung bezeichnet wird [3]. Zu einem bestimmten Zeitpunkt während der Entmischung

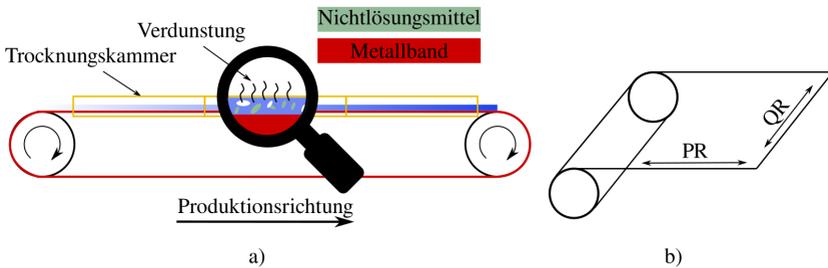


Abbildung 2.2: In a) ist eine Vereinfachte Darstellung einer Ziehmaschine zur Anwendung des Verdunstungsverfahrens dargestellt. Das sich in Produktionsrichtung bewegende Metallband, auf dem der Übergang von Polymerlösung zur porösen CN-Membran erfolgt, ist dabei mit drei verschiedenen Trockenkammern dargestellt. In b) wird die Definition der lateralen Richtungen entlang der Produktionsrichtung (PR) und quer dazu (QR) anhand einer nach dem Herstellungsprozess aufgerollten Membran verdeutlicht.

beginnt sich die polymerreiche Phase zu verfestigen und bildet die feste Strukturmatrix, während die polymerarme Phase die Porenbildung verantwortet [9]. Beim Fällbadverfahren wird die Polymerlösung in ein sogenanntes Fällbad mit Nichtlösungsmittel getaucht, wodurch das Lösungsmittel durch das Nichtlösungsmittel ausgetauscht wird. Im Verdunstungsverfahren hingegen wird das meist flüchtige Lösungsmittel kontrolliert verdunstet, wodurch der Anteil des Nichtlösungsmittels stetig zunimmt und schließlich zur Entmischung führt. Alle in dieser Arbeit untersuchten Membranen wurden mittels des Verdunstungsverfahrens hergestellt. Bei diesem Verfahren wird die Polymerlösung als dünner Film auf ein Metallband in einer sogenannten Ziehmaschine aufgetragen. Das Metallband bewegt sich entlang der Produktionsrichtung, wie in Abbildung 2.2a) dargestellt [3]. Während des Durchlaufs durch verschiedene Trockenkammern verdunstet das Lösungsmittel und der Prozess zur Strukturbildung kann kontrolliert erfolgen. Gemäß Altschuh [3] und Hong et al. [10], entsteht beim Verdunstungsverfahren aufgrund der Durchführung des Prozesses auf einem Band ein Konzentrationsgradient des Nichtlösungsmittels (NL) über dem Polymerfilm. Dies resultiert aus der Verdunstung des Lösungsmittels und der damit verbundenen Erhöhung der NL-Konzentration. Dieser Gradient bewirkt, dass die Entmischung an der Oberseite des Films früher eintritt als beispielsweise an der Bandseite oder

im Inneren des Polymerfilms. Eine Studie von Ghaffari et al. [11] zeigt, dass ein solcher Konzentrationsgradient in Verbindung mit einem temperaturbedingten Gradienten während des Herstellungsprozesses eine anisotrope Strukturmorphologie hervorbringt. Ein ähnliches Verhalten, wenn auch weniger ausgeprägt, tritt ebenfalls entlang der Produktionsrichtung auf, da durch die kontinuierliche Bewegung des Metallbandes in diese Richtung ebenso lokale Konzentrations- und Temperaturgradienten entstehen können. Am Ende des Ziehmaschinenprozesses wird die fertige CN-Membran, wie in Abbildung 2.2b) dargestellt, aufgerollt. Dies führt dazu, dass zwei verschiedene laterale Richtungen definiert werden können: eine entlang der Produktionsrichtung (PR) und eine quer dazu (QR).

2.1.3 Charakterisierende Kenngrößen poröser Membranen

Im folgenden Abschnitt werden einige charakteristische Kenngrößen für poröse Strukturen vorgestellt. Diese ermöglichen eine quantitative Bewertung, beispielsweise von porösen Diagnostikmembranen und können weiterhin als effektive Strukturparameter verwendet werden, um das Verhalten der Flüssigkeitsausbreitung in porösen Membranen und damit einhergehend in medizinischen Lateral-Flow-Tests vorherzusagen.

Porosität

Die Porosität ε ist einer der charakteristischsten Parameter poröser Strukturen und beschreibt das Verhältnis des Porenvolumens V_p zum Gesamtvolumen V

$$\varepsilon = \frac{V_p}{V}. \quad (2.1)$$

Bei der Berechnung des Porenvolumens V_p kann zwischen offen- und geschlossenenporigen porösen Strukturen unterschieden werden. Lediglich vernetzte Poren,

die den Stofftransport ermöglichen, tragen zur effektiven Porosität ε_{eff} bei, während isolierte Poren zur Gesamtporosität ε zählen. In dieser Arbeit werden ausschließlich offenporige, hochporöse Diagnostikmembranen untersucht, bei denen isolierte Poren nicht vorhanden sind, und daher die zuvor genannte Unterscheidung nicht vorgenommen wird.

Geometrischer Porenradius

Der geometrische Porenradius r_p ist ein wichtiges Maß zur Charakterisierung des Porenraums in porösen Strukturen. In einfachen, regelmäßigen porösen Medien, wie z. B. Poren mit zylindrischer Geometrie, kann der Porenradius direkt gemessen oder berechnet werden. In komplexeren porösen Strukturen, wie sie beispielsweise in offenporigen Diagnostikmembranen vorkommen, wird der Porenradius häufig mithilfe von Bildgebungsverfahren bestimmt. Dabei wird ein Distanzfeld des Porenraums berechnet und anschließend analysiert, um einen gemittelten geometrischen Porenradius sowie eine Verteilung der Porenradien zu ermitteln [12, 13]. Es gibt keine einheitliche Konvention für die Wahl der Bestimmungsmethode des Porenradius. Die Ergebnisse können je nach Methode variieren, da sie auf unterschiedlichen Annahmen basieren. Diese Unterschiede werden in Abschnitt 5.3 genauer erläutert.

Spezifische Oberfläche

Die spezifische Oberfläche S_V lässt sich aus dem Verhältnis der intrinsischen Membranoberfläche S und dem Gesamtvolumen V

$$S_V = \frac{S}{V} \quad (2.2)$$

berechnen.

Anisotropie

Der Begriff Anisotropie bezeichnet die Richtungsabhängigkeit poröser Strukturen in Bezug auf eine oder mehrere Materialeigenschaften. Anisotrope Materialien zeigen in Abhängigkeit der Ausrichtung der Probe unterschiedliche strukturelle Eigenschaften, wohingegen isotrope Materialien unabhängig von ihrer Ausrichtung gleichartige Eigenschaften aufweisen [14]. Geometrische Anisotropie beschreibt speziell die strukturelle Unregelmäßigkeit in der Zusammensetzung eines Materials. In porösen Strukturen wird dies durch Poren abgebildet, die in eine oder zwei Richtungen gestreckt sind. Je nach Ausrichtung der Materialeigenschaft wird zwischen isotropen, transversal isotropen und orthotropen Strukturen unterschieden. Isotrope Materialien weisen, wie in Abbildung 2.3a) gezeigt, die gleiche strukturelle Beschaffenheit in alle Raumrichtungen auf, während transversal isotrope Materialien in eine Richtung gestreckt oder gestaucht sind, wie in Abbildung 2.3b) verbildlicht. Im Gegensatz dazu weisen orthotrope Materialien eine unterschiedliche Struktur in jeder Raumrichtung auf [15], was in Abbildung 2.3c) veranschaulicht wird. Um anisotrope Materialien vollständig zu beschreiben, wird ein Tensor verwendet, der die richtungsabhängigen Eigenschaften umfassend darstellt. Diese tensorielle Darstellung ermöglicht es mittels Eigenvektoren und Eigenwerten Aussagen über die Orientierung und den Grad der Anisotropie der jeweiligen Eigenschaft zu erhalten [16]. Als quantitativer Parameter zur Beschreibung einer Anisotropie einer beliebigen Eigenschaft λ kann der Grad der Anisotropie DA (engl. Degree of anisotropy) verwendet werden. Dieser beschreibt das Verhältnis des minimalen und maximalen richtungsabhängigen Werts der Eigenschaft λ und wird in der vorliegenden Arbeit wie folgt definiert

$$DA = 1 - \frac{\lambda_{\min}}{\lambda_{\max}}. \quad (2.3)$$

Hierbei entspricht $DA = 0$ einem isotropen und $0 < DA < 1$ einem anisotropen Material. Liegt weiterhin der oben genannte Fall einer orthotropen Anisotropie

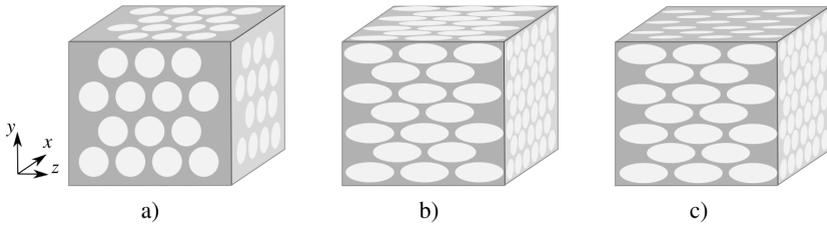


Abbildung 2.3: Abbildung a) zeigt eine isotrope poröse Struktur, b) eine transversal isotrope poröse Struktur, wobei eine Streckung des Porenraums in z -Richtung vorliegt. In c) wird eine orthotrope poröse Struktur abgebildet, bei der der Porenraum in alle Raumrichtungen unterschiedlich gestreckt ist.

vor, müssen zur vollständigen Beschreibung der Anisotropie zwei Grade der Anisotropie angegeben werden

$$DA_1 = 1 - \frac{\lambda_{\min}}{\lambda_{\max}},$$

$$DA_2 = 1 - \frac{\lambda_{\text{mean}}}{\lambda_{\max}},$$

wobei $\lambda_{\min} < \lambda_{\text{mean}} < \lambda_{\max}$ gilt.

Tortuosität

Poröse Strukturen sind gekennzeichnet durch ein Netzwerk aus Poren und Kanälen, die das Durchströmen von Flüssigkeiten oder Gasen ermöglichen. Die Tortuosität τ beschreibt den Grad der Umwegstrecke, den ein Fluid beim Durchqueren einer porösen Struktur unternehmen muss. Sie wird durch die komplexe Geometrie der Poren und Kanäle bestimmt, welche den Flussweg beeinflusst und den Pfad des Fluids verlängern kann. Eine höhere Tortuosität bedeutet eine längere Flusslänge gegenüber der geradlinigen Entfernung, was zu einem erhöhten Flusswiderstand und einer verlangsamten Durchtränkung führt.

In der Literatur wird eine Unterscheidung zwischen der geometrischen und der

effektiven Tortuosität vorgenommen [17]. Die geometrische Tortuosität τ_g bezieht sich auf die tatsächliche Verlängerung des Flussweges in einer porösen Struktur im Vergleich zur geradlinigen Entfernung. Sie hängt ausschließlich von der Geometrie der Poren und Kanäle ab und kann geometrisch wie folgt berechnet werden [18]

$$\tau_g = \frac{L_{\text{eff}}}{L} \geq 1. \quad (2.4)$$

Dabei bezeichnet L_{eff} die durchschnittliche geometrische Flussweglänge und L die Länge der Struktur, was anhand von Abbildung 2.4a) und 2.4b) verdeutlicht wird. Es sei jedoch angemerkt, dass dieser Ansatz die Tatsache vernachlässigt, dass die Transportvorgänge gleichzeitig durch mehrere Pfade stattfinden können und dass die Transportwiderstände je nach Querschnittsfläche dieser Pfade unterschiedlich wären. Durch Berücksichtigung beziehungsweise Gewichtung der entsprechenden Querschnitte ergibt sich die hydraulische Tortuosität τ_{hyd} . Unter der Annahme, dass für beide Strukturen die Porosität gleich bleibt, muss aufgrund des um den Faktor L_{eff}/L erhöhten Transportweges die Querschnittsfläche um denselben Faktor minimiert werden. Dadurch lässt sich die erhöhte Tortuosität folgendermaßen beschreiben [3, 19]

$$\tau_{\text{hyd}} = \left(\frac{L_{\text{eff}}}{L} \right)^2 \geq 1. \quad (2.5)$$

Das Konzept der geometrischen/hydraulischen Tortuosität liefert für einfache Geometrien gute Näherungswerte. Allerdings erweist es sich als unzureichend, wenn es um die Untersuchung komplexerer poröser Strukturen, wie in Abbildung 2.4c) dargestellt, geht.

In solchen Fällen kann die Tortuosität mittels der effektiven Leitfähigkeit σ_{eff} bestimmt werden. Unter Verwendung der Porosität ε und der Leitfähigkeit des reinen Porenraums σ_p , lässt sich diese wie folgt definieren [19]

$$\sigma_{\text{eff}} = \frac{\varepsilon}{\tau_{\text{eff}}} \sigma_p. \quad (2.6)$$

Die Bestimmung der unbekanntenen effektiven Leitfähigkeit σ_{eff} ist somit erforderlich, um die effektive Tortuosität τ_{eff} zu ermitteln.

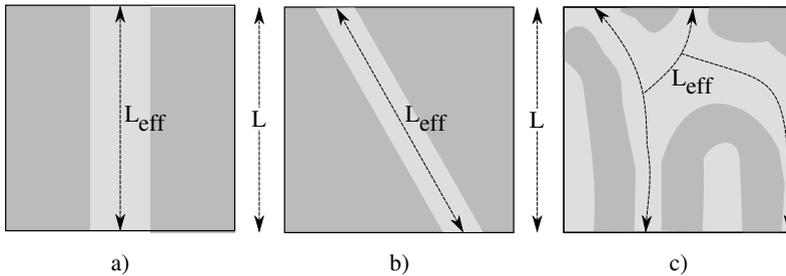


Abbildung 2.4: Schematische 2D-Darstellung der geometrischen Tortuosität, wobei für alle drei Strukturen der Porenraum in hellgrau und die Struktur in dunkelgrau dargestellt ist. Abbildung a) zeigt eine poröse Struktur mit einer Tortuosität von $\tau_g = 1$. In b) ist ein gekippter Porenraum abgebildet, wobei $\tau_g > 1$ gilt. Für eine komplexe Struktur wie in c) dargestellt, kann das Konzept der geometrischen Tortuosität nicht mehr angewendet werden.

Für eine übersichtliche Zusammenfassung dieser und weiterer unterschiedlicher Konzepte der Tortuosität wird auf Ghanbarian et al. [17] verwiesen.

Permeabilität

Die Permeabilität \mathbf{K} ist eine der bedeutendsten Eigenschaften poröser Strukturen und wird oftmals als Maß für die Durchlässigkeit eines Mediums verwendet. Das Darcy-Gesetz [20] ist hierbei ein grundlegender Ansatz, um die Permeabilität von porösen Strukturen zu verstehen und zu berechnen. Es bietet eine praktische Methode, um den Fluss von Fluiden oder Gasen in porösen Strukturen zu quantifizieren. Es besagt, dass die durch eine poröse Struktur strömende Menge proportional zu dem Druckunterschied zwischen zwei Punkten in der Struktur und invers proportional zur Dicke dieser ist. Formal kann das Gesetz von Darcy wie folgt dargestellt werden

$$\bar{U} = -\frac{\mathbf{K}\nabla p}{\mu L}. \quad (2.7)$$

Dabei beschreibt \vec{U} den Vektor der mittleren Darcy-Geschwindigkeit, \mathbf{K} die Permeabilität des porösen Mediums, ∇p den Druckgradienten zwischen der Strecke L und μ die dynamische Viskosität des durchströmenden Mediums. Im Allgemeinen ist die Permeabilität \mathbf{K} ein symmetrischer Tensor zweiten Ranges, wodurch eine strukturelle Anisotropie abgebildet werden kann. Im Falle einer isotropen Struktur ist die Permeabilität ein Skalar. Die Darcy-Geschwindigkeit \vec{U} und die vorliegende mittlere intrinsische Fluidgeschwindigkeit \bar{u} sind dabei über die Porosität ε wie folgt definiert

$$\vec{U} = \varepsilon \bar{u}. \quad (2.8)$$

Effektiver Porenradius

Der effektive Porenradius r_{eff} ist von entscheidender Bedeutung für die Modellierung des Kapillardrucks, der für den kapillargetriebenen Transport in porösen Membranen wesentlich ist. Der Kapillardruck Δp kann unter anderem mit Hilfe der Young-Laplace-Gleichung

$$\Delta p = 2\gamma_{\text{FG}}H = \frac{2\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)}{r_{\text{eff}}}, \quad (2.9)$$

abgebildet werden, wie im Abschnitt 2.2.4 dargelegt. Dabei steht γ_{FG} für die Oberflächenspannung und H für die mittlere Krümmung der freien Oberfläche. Bei kreisförmigen Zylindern kann der effektive Porenradius r_{eff} leicht ermittelt werden, da er in diesem Fall dem geometrischen Zylinderradius r entspricht. Zudem lässt sich r_{eff} durch den vorliegenden Kontaktwinkel θ mittels des trigonometrischen Zusammenhangs $H = \cos(\theta)/r$ mit der mittleren Krümmung H verbinden. Bei komplexen hochporösen und offenporigen Strukturen, wie sie bei Diagnostikmembranen vorliegen, stellt die Berechnung eines effektiven Porenradius eine erhebliche Herausforderung dar [21]. Dazu existieren Ansätze, die

sowohl experimentell [22] als auch simulativ [23] durchgeführt wurden, um einen Korrekturfaktor $F(r_s, r_p)$

$$F(r_s, r_p) = \frac{a}{r_s/r_p} + b \quad (2.10)$$

zu ermitteln. Dieser Korrekturfaktor basiert auf dem Verhältnis zwischen dem mittleren Stegradus r_s und dem mittleren geometrischen Porenradius r_p . Durch die simulative Untersuchung des Flüssigkeitsanstiegs in vereinfachten Ersatzgeometrien, ergab sich dabei für $a = 1,980$ und $b = 3,012$ [23]. Der effektive Porenradius lässt sich über

$$r_{\text{eff}} = F(r_s, r_p)r_p \quad (2.11)$$

ermitteln. Die Validierung mit experimentellen Ergebnissen hat gezeigt, dass das in [23] beschriebene Vorgehen sehr gut dazu geeignet ist, den Kapillardruck in porösen Membranen zu modellieren. Allerdings erlaubt diese Methode keine Darstellung der strukturellen Anisotropie. In der vorliegenden Arbeit wird in Kapitel 6.3 eine Methode vorgestellt, die es ermöglicht, einen richtungsabhängigen effektiven Porenradius zu berechnen, um genau diese Lücke zu adressieren.

2.2 Flüssigkeitsbenetzung in porösen Membranen

Im Folgenden werden die theoretischen Grundlagen zusammengefasst, die für das Verständnis der Modellierung der Flüssigkeitsausbreitung in porösen Strukturen, insbesondere in porösen Membranen, erforderlich sind. Darüber hinaus werden Modelle vorgestellt, die basierend auf den zuvor gezeigten effektiven Kenngrößen poröser Membranen, die Flüssigkeitsausbreitung in diesen und entsprechend in Lateral-Flow-Tests, vorhersagen können.

2.2.1 Oberflächenspannung

Zwischen nicht mischbaren Fluiden, wie Luft und Wasser, entsteht eine Grenzfläche. Diese Grenzfläche wird durch die Oberflächenspannung γ charakterisiert, die die aufzubringende Arbeit repräsentiert, um die Grenzfläche zu vergrößern. Die Ursache für die Oberflächenspannung liegt in den zwischenmolekularen Kräften der Flüssigkeit. Gemäß dem Lennard-Jones-Potential, wie es in Abbildung 2.5a) dargestellt wird, erfahren Moleküle, die sich unterhalb des Gleichgewichtsabstandes r_{GG} befinden, eine abstoßende Kraft F_{ab} , während Moleküle oberhalb dieses Abstandes eine anziehende Kraft F_{an} erfahren. Wie in Abbildung 2.5b) veranschaulicht, herrscht im Inneren der Phasen ein Kräftegleichgewicht. An der Grenzfläche hingegen bildet sich eine dünne Schicht aus wenigen Molekülen, in der der Abstand zwischen ihnen aufgrund fehlender Nachbarschaftsmoleküle größer ist. Infolgedessen überwiegen die anziehenden Kräfte. Diese Ungleichheit führt dazu, dass die Grenzschicht unter Spannung steht, welche als Oberflächenspannung bekannt ist. Aus diesem Zusammenhang

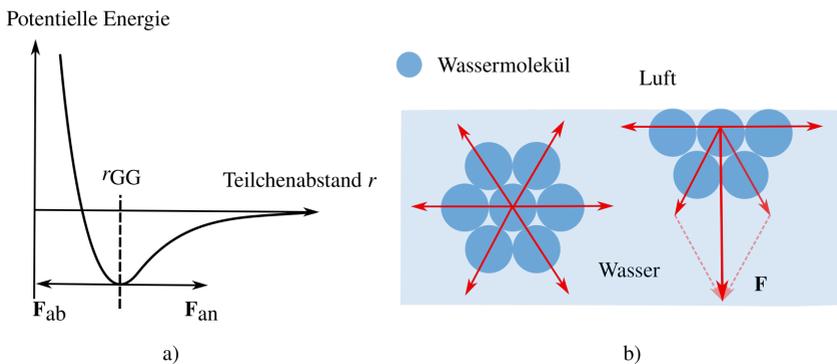


Abbildung 2.5: Skizze a) zeigt qualitativ das Lennard-Jones-Potential mit Kennzeichnung der anziehenden Kraft F_{an} , der abstoßenden Kraft F_{ab} und dem Gleichgewichtsabstand r_{GG} . In Skizze b) sind links im Bild die im Inneren der Phasen vorliegenden zwischenmolekularen Kräfte der Flüssigkeitsmoleküle dargestellt, während rechts die Kräfte an der Grenzfläche abgebildet sind.

ergibt sich, dass Flüssigkeiten immer eine Tendenz zur Minimierung ihrer Oberfläche haben. Dies führt beispielsweise zur Bildung von Wassertropfen, da diese geometrische Form unter konstantem Volumen die geringste freie Oberfläche aufweist.

2.2.2 Kontinuitätsgleichung

Die Kontinuitätsgleichung ist ein fundamentales Konzept in der Fluidmechanik, das den Erhalt der Masse in einem Strömungsfeld beschreibt. Sie besagt, dass die Masse in einem definierten Volumen des Fluids konstant bleibt, solange keine Quellen oder Senken vorhanden sind. Mathematisch wird die Kontinuitätsgleichung durch

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (2.12)$$

beziehungsweise

$$\underbrace{\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \rho \cdot \mathbf{u}}_{d\rho/dt} + \rho(\nabla \cdot \mathbf{u}) = 0 \quad (2.13)$$

ausgedrückt [24], wobei ρ die Dichte des Fluids, t die Zeit und \mathbf{u} das Geschwindigkeitsfeld abbildet. Für inkompressible Fluide gilt $d\rho/dt = 0$, sodass sich Gleichung 2.13 zu

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.14)$$

vereinfacht. Für eine inkompressible Strömung besagt die Kontinuitätsgleichung somit, dass die Divergenz des Geschwindigkeitsfeldes null ist, was darauf hinweist, dass die Massenerhaltung gewährleistet ist.

2.2.3 Youngsche Gleichung

Wenn ein Flüssigkeitstropfen die Oberfläche eines Festkörpers in einem umgebenden Fluid (Gas oder Flüssigkeit) berührt, entsteht an der Grenzfläche der drei Phasen ein Kontaktpunkt (2D) beziehungsweise eine Kontaktlinie (3D), wie in Abbildung 2.6a) dargestellt. An diesem Kontaktpunkt bildet sich im Gleichgewichtszustand ein Kontaktwinkel θ zwischen der freien Oberfläche der Flüssigkeit und dem Festkörper. Unter der Annahme, dass die benetzte Oberfläche chemisch homogen und glatt ist und dass das benetzende Fluid ein konstantes Volumen beibehält und keine Verdunstung auftritt, gilt im Gleichgewichtszustand der trigonometrische Zusammenhang zwischen den wirkenden Oberflächenspannungen γ und dem Kontaktwinkel θ am Kontaktpunkt (2D) beziehungsweise an der Kontaktlinie (3D), wie von Young [25] als

$$\cos(\theta) = \frac{\gamma_{GS} - \gamma_{FS}}{\gamma_{FG}} \quad (2.15)$$

beschrieben. Die Youngsche Gleichung beschreibt den Zusammenhang zwischen dem Kontaktwinkel θ , der Oberflächenspannung γ_{FG} zwischen der Flüssigkeit

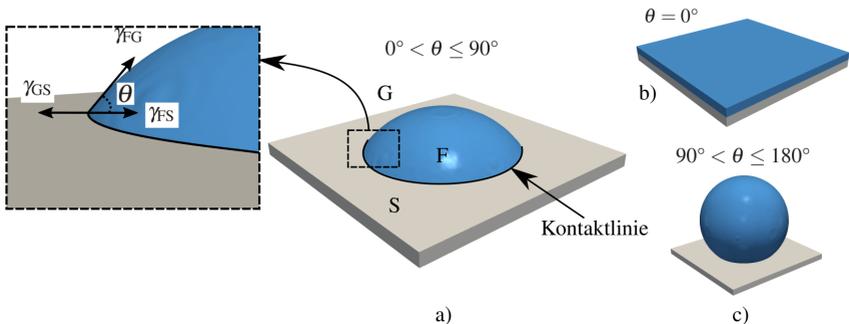


Abbildung 2.6: In a) wird die hydrophile Benetzung einer idealen Festkörperoberfläche (S) durch einen Flüssigkeitstropfen (F) in Anwesenheit von dem umgebendem Fluid (G) dargestellt. Darüber hinaus wird der trigonometrische Zusammenhang zwischen den Oberflächenenergien und dem Kontaktwinkel an der Kontaktlinie verdeutlicht. In b) wird eine vollständige Benetzung und in c) eine hydrophobe Benetzung veranschaulicht.

(F) und dem umgebenden Fluid (G), der Grenzflächenspannung γ_{FS} zwischen Flüssigkeit und Festkörper (S) sowie der freien Oberflächenenergie γ_{GS} des Festkörpers. Im thermodynamischen Gleichgewicht wird die Form eines Tropfens durch den am Kontaktpunkt vorliegenden Kontaktwinkel charakterisiert. Dabei können drei unterschiedliche Fälle auftreten. Bei der vollständigen Benetzung liegt $\theta = 0^\circ$ vor und der Festkörper wird von der Flüssigkeit vollständig benetzt, wobei sich ein dünner Flüssigkeitsfilm ausbildet, wie in Abbildung 2.6b) dargestellt. In dieser Situation überwiegen die Adhäsionskräfte zwischen der festen Oberfläche und der Flüssigkeit gegenüber den Kohäsionskräften innerhalb der Flüssigkeit. Hydrophile Benetzung ist durch einen Kontaktwinkel von $0^\circ < \theta \leq 90^\circ$ gekennzeichnet (siehe Abbildung 2.6a)). Im Gegensatz dazu weist ein hydrophobes Benetzungsverhalten einen Kontaktwinkel von $90^\circ < \theta \leq 180^\circ$ auf, was bedeutet, dass die Flüssigkeit von der Oberfläche abperlt (siehe Abbildung 2.6c)). Bei den zwei zuletzt genannten Fällen überwiegen die Kohäsionskräfte die Adhäsionskräfte.

2.2.4 Young-Laplace Gleichung

Das Phänomen der Oberflächenspannung entsteht aus dem Gradienten der potenziellen Energie. Als Folge der inhärenten Tendenz des Systems, die Energie zu minimieren, bilden sich minimale Oberflächen, was zur Manifestation gekrümmter Oberflächen führt. Folglich zeigt eine mechanische Gleichgewichtsanalyse, dass ein Druckunterschied Δp über die Grenzfläche vorliegen muss, wobei auf der konkaven Seite ein höherer Druck herrscht. Für den wie in Abbildung 2.7a) gezeigten vereinfachten Fall einer halbkugelförmigen Grenzfläche mit dem Radius R ergibt sich dafür folgende mechanische Gleichgewichtsanalyse [26]

$$\pi R^2 \Delta p = 2\pi R \gamma_{FG}, \quad (2.16)$$

womit sich für den Druckunterschied folgender Zusammenhang ergibt

$$\Delta p = \frac{2\gamma_{FG}}{R}. \quad (2.17)$$

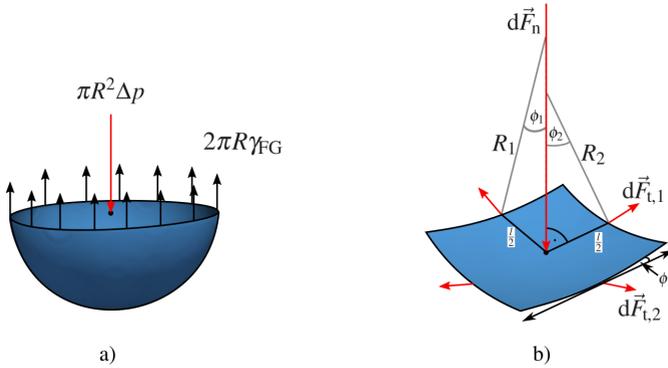


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des an der Grenzfläche vorliegenden Druckunterschieds Δp anhand einer in a) gezeigten halbkugelförmigen Grenzfläche mit dem Radius R und eines in b) dargestellten beliebig gekrümmten rechteckigen Flächenelements mit den beiden Krümmungsradien R_1 und R_2 .

Für die allgemeine Betrachtung eines beliebig gekrümmten rechteckigen Flächenelements, wie es in Abbildung 2.7b) dargestellt ist, ergibt sich mit den beiden Krümmungsradien R_1 und R_2 sowie den Kantenlängen l , folgendes Kräftegleichgewicht

$$\underbrace{\Delta p (l \cos(\phi))^2}_{d\vec{F}_n} = 2 \underbrace{(\gamma_{FG} l \sin(\phi_1))}_{d\vec{F}_{t,1}} + 2 \underbrace{(\gamma_{FG} l \sin(\phi_2))}_{d\vec{F}_{t,2}}. \quad (2.18)$$

Hier steht die durch den Druckunterschied über der Oberfläche induzierte Kraft $d\vec{F}_n$ den Tangentialkräften $d\vec{F}_{t,1}$ und $d\vec{F}_{t,2}$ gegenüber.

Mit den trigonometrischen Zusammenhängen

$$\sin(\phi_1) = \frac{l}{2R_1} \quad \text{und} \quad \sin(\phi_2) = \frac{l}{2R_2} \quad (2.19)$$

und der Annahme, dass kleine Winkel ϕ vorliegen und somit $\cos(\phi) \sim 1$ gilt, ergibt sich die Young-Laplace-Gleichung [27]

$$\Delta p = \gamma_{FG} \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right). \quad (2.20)$$

Es sei angemerkt, dass für den Fall $R_1 = R_2$ die Gleichung 2.17 vorliegt. Der hier dargestellte Druckunterschied Δp ist beim Flüssigkeitstransport in porösen Strukturen hauptsächlich für den Kapillareffekt verantwortlich. Die Young-Laplace-Gleichung bietet daher eine Möglichkeit, diesen Effekt unter der Annahme einer zylindrischen Kapillare zu quantifizieren.

2.2.5 1-D Impulsbilanz in einer zylindrischen Kapillare

Die kapillargetriebene Flüssigkeitsausbreitung wird durch die Bilanzierung der zeitlichen Änderung des Impulses und der äußeren Kräfte über ein Kontrollvolumen beschrieben [28]. Zu den berücksichtigten Kräften gehören die Gewichtskraft, die viskose Reibungs-, die Trägheits- und die Kapillarkraft. Eine schematische Darstellung in Abbildung 2.8 veranschaulicht die Wirkung dieser Kräfte anhand einer zylindrischen Kapillare. In der vorliegenden Modellierung der 1-D Impulsbilanz des Strömungsvorgangs werden die folgenden Annahmen getroffen, die die Grundlage für die Berechnungen bilden: i) Es wird von Newtonschen Flüssigkeiten ausgegangen, bei denen die Viskosität μ konstant ist, da ii) die Bedingungen als isotherm angenommen werden, was bedeutet, dass die Temperatur T konstant bleibt und die Stoffwerte daher als konstant betrachtet werden. iii) Es werden keine Verdunstungseffekte berücksichtigt. iv) Es wird angenommen, dass

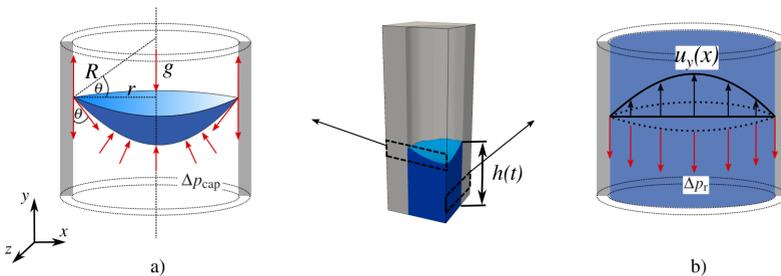


Abbildung 2.8: Die Abbildungen a) und b) zeigen die relevanten Kräfte und Impulse auf ein Kontrollvolumen zur Modellierung des Flüssigkeitsanstiegs in einer zylindrischen Kapillare. In a) werden die Kapillar- und Gravitationskräfte dargestellt, während in b) die Effekte von Reibung und Trägheit veranschaulicht werden.

keine Strömungsverluste auftreten, wenn die Flüssigkeit in die Kapillare eintritt.
 v) Die viskose Reibung der verdrängten Luft wird in diesem Modell vernachlässigt. Unter Berücksichtigung dieser Annahmen lässt sich die Impulsbilanz wie folgt formulieren [3]

$$\underbrace{\frac{2\gamma_{FG} \cos(\theta)}{r}}_{\text{Kapillarität}} = \underbrace{\frac{8\mu}{r^2} h \dot{h}}_{\text{Reibung}} + \underbrace{\rho \frac{d(h\dot{h})}{dt}}_{\text{Trägheit}} + \underbrace{\rho gh}_{\text{Gravitation}} . \quad (2.21)$$

Die Kapillarität, die die treibende Kraft im beobachteten Strömungsprozess darstellt, wird mit der Beziehung $R = r / \cos(\theta)$ und der Young-Laplace-Gleichung 2.20 beschrieben. Diese Größe hängt von verschiedenen Faktoren ab, darunter dem Kontaktwinkel θ , der Oberflächenspannung γ_{FG} und dem Kapillarradius r . Der Reibungsterm in diesem zylindrischen Kapillarmodell wird durch die Hagen-Poiseuille-Gleichung dargestellt. Dieser Term hängt wesentlich von der dynamischen Viskosität μ , der Strömungsgeschwindigkeit \dot{h} und dem Quadrat des Kapillarradius r^2 ab. Der Trägheitsterm beruht auf der Fluidichte ρ sowie der Höhe h und der Geschwindigkeit der Strömung \dot{h} . Die Gravitationskraft wird berücksichtigt, indem der hydrostatische Druck in die Gleichung einfließt, wobei die Erdbeschleunigung g , die Steighöhe h und die Dichte des Fluids ρ eine Rolle spielen.

2.2.6 Makroskopische Wickingmodelle

Wicking beschreibt die spontane Benetzung eines Fluids in einer porösen Struktur. Im Fall von CN-Membranen wird dabei die Gasphase (Luft) aufgrund des negativen Kapillardrucks (vgl. Abschnitt 2.2.4) an der Wasser-Luft-Grenzfläche von der Flüssigphase (Wasser) verdrängt. In einem LFT ermöglicht dieser Effekt den Transport der Probenflüssigkeit zum Testbereich. Lenormand et al. [29] haben gezeigt, dass unter der Annahme eines hohen Viskositätsverhältnisses zwischen den beteiligten Phasen oder einer schnellen Ausbreitung der benetzenden Flüssigkeit in porösen Strukturen auf makroskopischer Ebene eine gleichmäßige Front entstehen kann, die auch als Scharfe-Front (engl. *sharp-front*) bezeichnet

wird [30]. Ist dies der Fall, kann das Wickingverhalten durch einphasige Strömungsansätze modelliert werden. Dazu gehören unter anderem die Kapillarmodelle von Lucas und Washburn [31, 32] sowie die porösen Kontinuummodelle [30], die auf Darcys Gesetz und der Massenerhaltung beruhen [33].

Bei dem Lucas-Washburn (LW) Modell wird eine poröse Struktur als ein Bündel von parallelen zylindrischen Kapillaren betrachtet, womit sich der folgende Zusammenhang

$$h(t) = \sqrt{\frac{r\gamma\cos(\theta)}{2\mu}}\sqrt{t} \quad (2.22)$$

zwischen der benetzten Höhe $h(t)$ und der Zeit t ergibt. Dabei beschreibt r den Porenradius, γ die Oberflächenspannung, θ den wirkenden Kontaktwinkel und μ die dynamische Viskosität. Somit zeigten Lucas und Washburn, dass die Wickinghöhe $h(t)$ direkt proportional zur Quadratwurzel der Wickingszeit t ist, eine Beziehung, die allgemein als das Lucas-Washburn Modell bekannt ist. Für die Analyse komplexer Porenräume in porösen Strukturen gibt es Ansätze, die das Lucas-Washburn-Modell erweitern, beispielsweise durch Berücksichtigung der Tortuosität. Dennoch können solche Modelle in Fällen mit sehr komplexen Strukturen ungenau sein, da sie die realen Gegebenheiten möglicherweise nicht vollständig erfassen können.

Der zweite Ansatz zur Untersuchung des Wickingverhaltens in porösen Strukturen basiert, wie bereits erwähnt, auf dem Darcy Gesetz. Dabei wird der Strömungsvorgang im bereits benetzten, voll gesättigten Teil der porösen Struktur durch einen Druckgradienten beschrieben, der zwischen der Flüssigkeitsfront und dem Einstömungsrand vorliegt. Dafür wird die Darcy-Gleichung

$$\vec{U} = -\frac{\mathbf{K}\nabla\bar{p}}{\mu L} \quad (2.23)$$

in Kombination mit der Kontinuitätsgleichung 2.14

$$\nabla \cdot \vec{U} = 0, \quad (2.24)$$

angewendet. Hierbei stellt \bar{U} die gemittelte Darcy-Geschwindigkeit dar, \bar{p} einen modifizierten intrinsischen Druck und \mathbf{K} sowie μ repräsentieren die konstanten Struktureigenschaften der Permeabilität und der dynamischen Viskosität. Der modifizierte Druck \bar{p} wird nach [34] derart definiert, dass einerseits der hydrostatische als auch der über die Poren gemittelte hydrodynamische Druck p mit

$$\bar{p} = p + \rho gh \quad (2.25)$$

abgebildet wird. Dabei beschreibt h die Höhe eines beliebigen Punktes innerhalb der vollgesättigten porösen Struktur. Unter der Annahme, dass die poröse Struktur unterhalb der Flüssigkeitsfront vollständig benetzt ist und die Luft vollständig verdrängt hat, kann der Wickingprozess als quasi-stationäres Randwertproblem betrachtet werden, wobei die Druckverteilung im gesättigten Bereich unterhalb der Ausbreitungsfrent gelöst wird [3]. Durch die Kombination der Gleichung 2.23 und 2.24 kann die Druckverteilung im gesättigten Bereich mit

$$\frac{d^2 \bar{p}}{dh^2} = 0 \quad (2.26)$$

abgebildet werden [34]. Nach zweimaliger Integration von Gleichung 2.26, kann der Druck mit der allgemeinen Lösung $\bar{p}(h) = Ah + B$ beschrieben werden, woraus sich mit den zwei Randbedingungen $\bar{p}(0) = 0$ und $\bar{p}(h_f) = \Delta p_{\text{kap}}$ folgende Druckverteilung ergibt

$$\bar{p}(h) = \frac{h}{h_f} \Delta p_{\text{kap}}. \quad (2.27)$$

Hier bildet h_f die Höhe und p_{kap} den Kapillardruck der Flüssigkeitsfront ab. Durch Gleichsetzen der Geschwindigkeit \dot{h}_f der Flüssigkeitsfront mit der Darcy-Geschwindigkeit \bar{U} unter Berücksichtigung der Porosität ε

$$\frac{dh_f}{dt} = \frac{\bar{U}(h = h_f)}{\varepsilon} = -\frac{K}{\varepsilon \mu} \frac{d\bar{p}}{dh}, \quad (2.28)$$

kann nach anschließender Integration von Gleichung 2.28 der Wickingprozess in Abhängigkeit der Zeit t wie folgt beschrieben werden

$$h(t) = \sqrt{\frac{2K\Delta p_{\text{kap}}}{\varepsilon\mu}} \sqrt{t}. \quad (2.29)$$

Im Vergleich zum LW-Modell ermöglicht dieser Ansatz aufgrund der Berücksichtigung effektiver Strukturparameter, wie der Permeabilität, eine verbesserte Vorhersage des Wickingverhaltens in porösen Medien. Darüber hinaus können komplexe Strukturen durch die Berücksichtigung eines effektiven Porenradius in Kombination mit der Young-Laplace-Gleichung abgebildet werden, was eine genauere Beschreibung des Kapillardrucks ermöglicht. Auf letzteres wird in dieser Arbeit in Abschnitt 6.3 ausführlicher eingegangen.

2.3 Porennetzwerkmodell zur Abstraktion poröser Strukturen

Ein Porennetzwerkmodell (PNM) bietet einen Ansatz, um den Porenraum einer porösen Struktur durch Poren und Kanäle zu abstrahieren. Das Ziel dieser Abstraktion ist es, die Struktur auf ihre wesentlichen Eigenschaften wie Morphologie und Topologie zu reduzieren. Dies ermöglicht zum einen innovative Charakterisierungsmethoden, zum anderen bietet ein PNM die Möglichkeit Strömungssimulationen deutlich recheneffizienter durchzuführen. Die Grundlage eines Porennetzwerkmodells findet sich in der Graphentheorie [35], in der ein ungerichteter Graph $G = (P, T)$ definiert wird. Dieser besteht aus einer Menge von Knoten P und einer Menge von Kanten T , wobei jede Kante $T_i \in T$ im Graphen G zwei Knoten aus P miteinander verbindet. Bei einem PNM entsprechen die Poren den Knoten und die Kanäle beziehungsweise die Porenengstellen den Kanten. Abbildung 2.9b) zeigt schematisch ein Porennetzwerkmodell, das aus dem in Abbildung 2.9a) zweidimensional dargestellten Porenraum der Struktur extrahiert

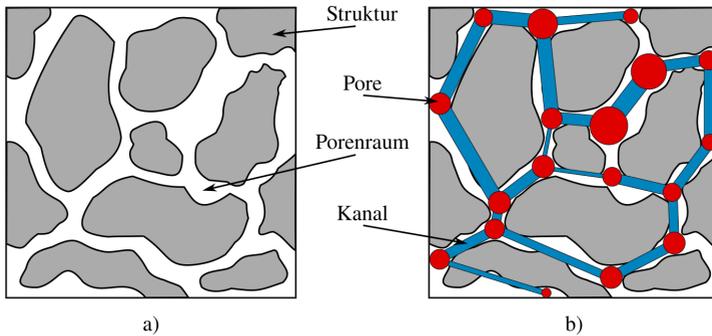


Abbildung 2.9: Die zweidimensionale poröse Struktur, die in Teilabbildung a) zu sehen ist, wird in Teilabbildung b) durch ein Porennetzwerkmodell repräsentiert. Dabei wird der Porenraum lediglich durch Poren und Kanäle abstrahiert.

wurde. In Kapitel 5 wird detaillierter auf die Modellierung und Anwendung eines Porennetzwerkmodells eingegangen.

2.4 Bildbearbeitungsalgorithmen

Im Folgenden werden zentrale Algorithmen zur Verarbeitung von Graustufenbildern, die in dieser Arbeit von Bedeutung sind, vorgestellt. Zuerst wird das Prinzip der Wasserscheidentransformation erörtert, die zur Aufteilung eines Bildes in verschiedene Segmente dient. Danach erfolgt eine Beschreibung des *Canny-Algorithmus*, der in dieser Studie zur Segmentierung von Graustufenbildern eingesetzt wird. Abschließend wird der *Closing-Algorithmus* vorgestellt, der bei der Nachbearbeitung bereits segmentierter binärer Bilder zur Anwendung kommt.

2.4.1 Wasserscheidentransformation zur Bildsegmentierung

Die Wasserscheidentransformation ist ein Verfahren in der Bildverarbeitung, das dazu dient, bestimmte Bereiche einer Abbildung in zusammenhängende Segmente zu unterteilen. Dies geschieht, indem die Helligkeitswerte der Pixel als Höheninformation interpretiert werden, was im zweidimensionalen Fall eine Art Höhenprofil erzeugt. In Abbildung 2.10b) wird solch ein Höhenprofil für das in Abbildung 2.10a) gezeigte Bild dargestellt. Dieses Höhenprofil hat verschiedenen hoch gelegene Auffang- oder Sammelbecken, in denen sich bei Anhebung des Grundwasserspiegels Wasser sammelt. Dieser Umstand wird ausgenutzt, um ein Bild in zusammengehörende Segmente zu unterteilen. Der Startpunkt dieses Prozesses liegt beim tiefsten (optisch dunkelsten) Punkt des Bildes, wo der Grundwasserspiegel zunächst positioniert wird. Infolgedessen beginnt das tiefste Sammelbecken sich allmählich mit Wasser zu füllen bis der Grundwasserspiegel den tiefsten Punkt eines anderen Sammelbeckens erreicht. An diesem Punkt beginnen beide Sammelbecken, sich zu füllen (vgl. Abbildung 2.11a)), bis sie die sogenannte Wasserscheide zwischen ihnen erreichen (vgl. Abbildung 2.11b)). Die Stelle, an der zwei Sammelbecken miteinander verschmelzen, definiert die Grenze zwischen zwei Bildsegmenten. Dieser Prozess setzt sich fort, während

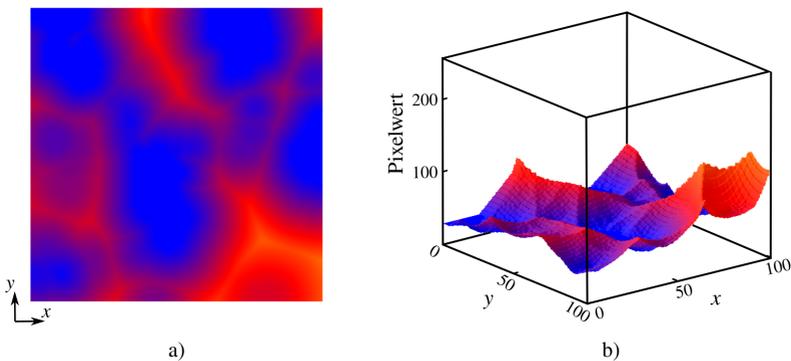


Abbildung 2.10: Darstellung des in a) gezeigten Bildes als dreidimensionales Höhenprofil in b).

der Grundwasserspiegel schrittweise angehoben wird, bis er den höchsten Punkt im Höhenprofil erreicht (vgl. Abbildung 2.11c)). Zu diesem Zeitpunkt ist die Segmentierung des gesamten Bildes abgeschlossen [36].

Normalerweise führt die in diesem Abschnitt beschriebene Wasserscheidentransformation dazu, dass mehr Segmente erkannt werden, als beabsichtigt. Um diese Übersegmentierung zu reduzieren, gibt es die modifizierte markerbasierte Wasserscheidentransformation [37], die mit sogenannten Markern arbeitet. Ein Marker ist eine Position im Bild, die als Ausgangspunkt für den Algorithmus fungiert. Die Anzahl der Marker bestimmt auch die Anzahl der resultierenden Segmente, da nicht jeder lokale Tiefpunkt, der noch keinem Segment zugeordnet ist, im Verlauf des Anhebens des Grundwasserspiegels automatisch als neues Segment definiert wird. Um die Positionen und Anzahl der Marker festzulegen, ist es ratsam, lokale Tiefpunkte im Höhenprofil des Bildes zu identifizieren und diese gegebenenfalls anhand geeigneter Kriterien zu filtern. Dadurch wird eine präzisere Segmentierung erreicht, und eine Übersegmentierung kann vermieden werden.

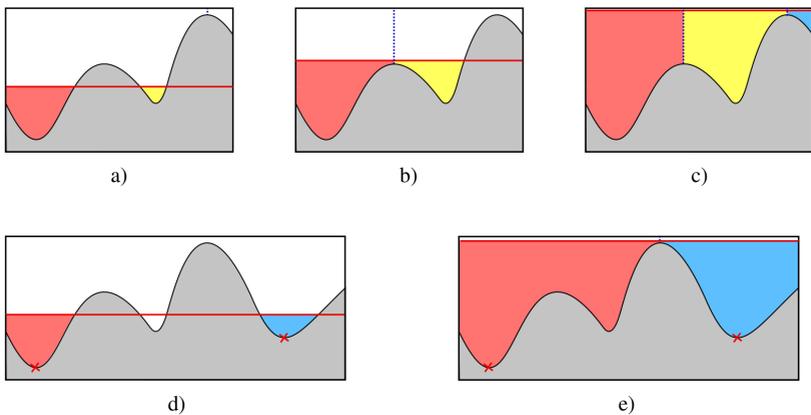


Abbildung 2.11: Schematische Darstellung der Wasserscheidentransformation eines 2D-Bildes: In a) erfolgt noch keine Berührung zweier Sammelbecken, in b) wird die erste Wasserscheide detektiert und in c) ist das Bild vollständig in drei Bildsegmente unterteilt. In d) wird die markerbasierte Wasserscheidentransformation veranschaulicht, wobei die Erhöhung des Grundwasserspiegels von den beiden rot markierten Markern ausgeht. Schließlich zeigt Abbildung e) das vollständig segmentierte Bild.

Dies wird in den Abbildungen 2.11d) und 2.11e) veranschaulicht, wobei durch die Platzierung der rot markierten Marker das Bild im Vergleich zur konventionellen Wasserscheidentransformation lediglich in zwei Segmente unterteilt wird.

2.4.2 Canny-Algorithmus zur Kantenerkennung

Der *Canny-Algorithmus* ist ein bekannter Algorithmus zur Kantenerkennung in digitalen Bildern. Er wurde von John F. Canny im Jahr 1986 [38] entwickelt und zeichnet sich durch seine Fähigkeit aus, Kanten in Bildern präzise und zuverlässig zu erkennen. Im Folgenden wird das grundlegende Konzept vorgestellt.

Der Algorithmus beginnt damit das Eingangsbild mithilfe eines Gauß-Filters zu glätten. Dieser Schritt reduziert das Rauschen im Bild und sorgt für eine gleichmäßigere Verteilung der Pixelwerte. Anschließend wird mithilfe eines Sobel-Operators für jedes Pixel der Gradient des geglätteten Bildes sowohl in horizontale G_x als auch vertikale Richtung G_y berechnet. Dieser Gradient repräsentiert die Änderung der Helligkeit in verschiedene Richtungen und zeigt damit mögliche Kantenpositionen an. Im nächsten Schritt werden diejenigen Pixel ausgewählt, die die größte Änderung in der Gradientenrichtung aufweisen. Alle anderen Pixel in der Nähe dieser ausgewählten Pixel werden unterdrückt, da sie wahrscheinlich keine starken Kanten darstellen. Um sicherzustellen, dass nur starke Kanten erkannt werden, werden zwei Schwellenwerte für den Gradienten festgelegt. Pixel mit Gradientenwerten über dem oberen Schwellenwert werden als starke Kanten betrachtet, während Pixel mit Werten unterhalb des unteren Schwellenwerts verworfen werden. Pixel mit Werten zwischen den beiden Schwellenwerten werden anhand ihrer Verbindung zu starken Kanten entschieden. In Abbildung 2.12a) wird der letzte Schritt schematisch dargestellt. Dabei wird die Kante am Punkt A beibehalten, da ihr Gradientenwert über dem oberen Schwellenwert liegt. Obwohl der Gradientenwert von Kante C unterhalb des oberen Schwellenwerts liegt, wird sie beibehalten, da C eine direkte Verbindung zur Kante A aufweist. Kante B hingegen wird verworfen, da sie keine direkte Verbindung zu einer starken Kante hat.

Der *Canny-Algorithmus* erzeugt ein binäres Bild, in dem die erkannten Kanten

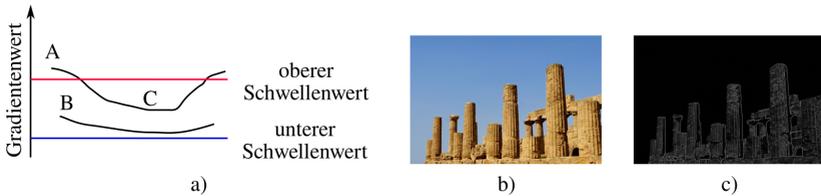


Abbildung 2.12: In a) wird schematisch der letzte Schritt des *Canny-Algorithmus* zur Auswahl von starken und schwachen Kanten dargestellt. Dabei wird anhand der Gradientenwerte der zuvor erkannten Kanten A, B und C verdeutlicht, welche Kanten beibehalten und welche verworfen werden. In c) wird die Anwendung des *Canny-Algorithmus* auf das in b) gezeigte Bild veranschaulicht.

als Pixel mit dem Wert eins und der Hintergrund als Pixel mit dem Wert null dargestellt werden. Dieses Ergebnisbild enthält präzise und gut definierte Kanten, die in weiteren Bildverarbeitungsanwendungen verwendet werden können. Exemplarisch wird in Abbildung 2.12c) das Ergebnis des *Canny-Algorithmus* für das in Abbildung 2.12b) gezeigte Bild präsentiert.

2.4.3 Closing-Algorithmus zur Schließung von Bildlücken

Der *Closing-Algorithmus* ist ein grundlegendes Konzept in der morphologischen Bildverarbeitung, das in der Regel auf binären Bildern angewendet wird. Dieser Algorithmus gehört zu den grundlegenden Operationen, die zur Formanalyse und Verbesserung von Objekten in Bildern verwendet werden. Der Hauptzweck des *Closing-Algorithmus* besteht darin, unter Beibehaltung der Objektform Lücken in diesen zu schließen und kleinere Störungen zu eliminieren, um eine glattere und genauere Darstellung der Objekte im Bild zu erhalten. Die Operation des *Closings* basiert auf zwei grundlegenden morphologischen Operationen: der Dilatation und der Erosion. Bei der Dilatation werden Objekte in einem Bild erweitert, indem ein Strukturelement über das Bild geschoben wird, wodurch die Objekte größer werden. Bei der Erosion rastert ein Strukturelement das binäre Bild ab. Wenn das Strukturelement vollständig auf ein Objekt im Bild passt

(d.h., wenn alle Pixel des Strukturelements und die entsprechenden Pixel im Objekt im Bild den Wert 1 haben), bleibt das Pixel an dieser Position unverändert. Wenn jedoch nur ein Pixel des Strukturelements auf Hintergrundpixel (den Wert Null) trifft, wird das Pixel im Zentrum des Strukturelements im Ergebnisbild auf Null gesetzt. Der *Closing-Algorithmus* kombiniert diese beiden Operationen auf folgende Weise: Mit ein und demselben Strukturelement wird zunächst eine Dilatation auf das binäre Bild angewendet, gefolgt von einer Erosion. Dieser Prozess hat den Effekt, kleine Lücken in den Objekten zu schließen und kleinere Störungen zu eliminieren, während die Form und Größe der Hauptobjekte weitestgehend erhalten bleiben. Die Darstellung in Abbildung 2.13 veranschaulicht diesen Prozess. In Abbildung 2.13a) ist ein binäres Bild mit drei Objekten abgebildet. In Abbildung 2.13b) wird an diesem Bild eine Dilatation mit einem quadratischen Strukturelement durchgeführt, wodurch die Objekte um die hellgrau hervorgehobenen Pixel erweitert wurden. Anschließend, nach der Erosion in Abbildung 2.13c), wurden die Zwischenräume geschlossen, wobei die ursprüngliche Form der Objekte beibehalten wurde.

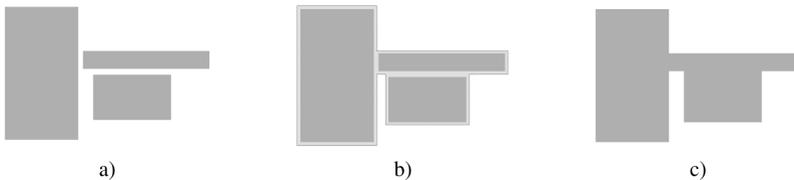


Abbildung 2.13: Anwendung des *Closing-Algorithmus* auf das in a) gezeigte binäre Bild mit drei rechteckigen Objekten. Zunächst werden die Objekte durch eine Dilatation mit einem quadratischen Strukturelement um die in b) hellgrau hervorgehobenen Pixel erweitert. Nach einer anschließenden Erosion mit demselben Strukturelement, ergibt sich das fertige Bild in c).

3 Generierung digitaler Zwillinge poröser Membranen

In diesem Kapitel werden die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Methoden zur Konstruktion digitaler Zwillinge von porösen Membranstrukturen vorgestellt. Dabei werden zwei Hauptansätze behandelt: die Rekonstruktion realer Membranen und die algorithmusbasierte Generierung.

3.1 Rekonstruktion realer Membranstrukturen

Wie einleitend erwähnt wird im Folgenden eine Methode vorgestellt, um digitale Abbilder realer Membranstrukturen mithilfe von bildgebenden Verfahren zu erzeugen. Die Rekonstruktion digitaler Zwillinge basiert dabei auf hochaufgelösten dreidimensionalen Schicht-Aufnahmen realer Membranen.

3.1.1 Konfokale Laser-Scanning Mikroskopie (CLSM)

Die Konfokale Laser-Scanning Mikroskopie (Abk. CLSM, nach englisch: confocal laser scanning microscopy) ist eine Bildgebungstechnik, die hochaufgelöste Bilder von Proben erstellen kann. Im Gegensatz zur konventionellen Lichtmikroskopie, bei der die gesamte Probe beleuchtet wird, ist es bei der CLSM nur ein kleiner Punkt der Probe. Das sukzessive Abrastern (engl. scanning) der Probe erstellt ein Gesamtbild derselben. Gegenüber herkömmlichen Lichtmikroskopen bietet die Konfokalmikroskopie eine beträchtliche Verbesserung, da sie

es ermöglicht, optische Schnitte von Proben zu erstellen und dreidimensionale Informationen zu gewinnen. Sie wird in diversen wissenschaftlichen Disziplinen eingesetzt, wie der Biologie, der Nanotechnologie oder den Materialwissenschaften [12, 39, 40].

Der folgende Abschnitt beschreibt die Komponenten eines Konfokalmikroskops sowie deren jeweilige Funktion. Zunächst wird ein Laserstrahl verwendet, um das zu untersuchende Objekt zu beleuchten. Dieser wird auf eine definierte Wellenlänge eingestellt, wodurch eine optimale Anregung der Probe gewährleistet wird. Eine präzise Anordnung optischer Linsen fokussiert den Laserstrahl, um einen hochgradig lokalisierbaren Bereich auf der Probe gezielt zu beleuchten. Der fokussierte Laserpunkt regt die Probe an, wodurch Licht zurückgestreut wird. Dieses wird durch eine Sammellinse gebündelt und durch ein Pinhole-Blendenloch geleitet. Das Pinhole-Blendenloch wirkt wie ein räumlicher Filter der nur jenes Licht durchlässt, welches aus dem fokussierten Punkt der Probe stammt. Hierdurch können optische Schnittbilder mit hohem Kontrast erzeugt werden, da Streulicht aus anderen Bereichen der Probe blockiert wird. Das durch das Pinhole-Blendenloch gelassene Licht trifft auf einen Detektor, der das Licht in ein elektrisches Signal umwandelt. Dieses wird durch einen Detektor wahrgenommen und an einen Computer weitergeleitet, der die Daten verarbeitet und ein Bild der Probe erstellt. Abbildung 3.1a) veranschaulicht diesen Messprozess schematisch. Das von der Lichtquelle kommende Licht wird darin grün und das von der Probe reflektierte Licht rot dargestellt. Um ein vollständiges Bild der Probe zu erhalten, wird der fokussierte Punkt des Laserstrahls über die Probe bewegt. Dies kann beispielsweise mechanisch durch einen beweglichen Probenstisch realisiert werden. Darüber hinaus ist es möglich Fluoreszenzfarbstoffe zu verwenden, um spezifische Strukturen oder Moleküle in der Probe zu markieren. Diese Arbeit nutzt diesen Umstand, um die intrinsische Membranoberfläche mit einem Fluoreszenzfarbstoff zu benetzen und so eine wie in Abbildung 3.1b) gezeigte dreidimensionale Darstellung der Membranstruktur zu erstellen. Die Probenpräparation wurde in dieser Arbeit gemäß dem folgenden Verfahren durchgeführt. Zuerst wurde das zu mikroskopierende Membranstück mit den Abmes-

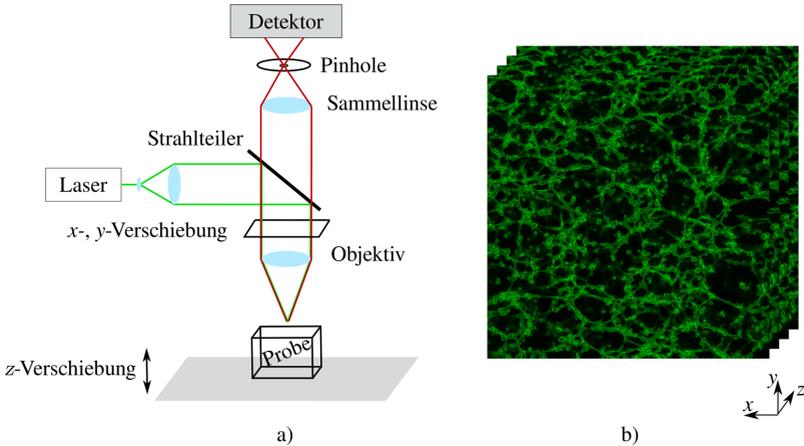


Abbildung 3.1: Abbildung a) zeigt schematisch die Funktionsweise eines Konfokalen Laser-Scanning Mikroskops. Das von der Lichtquelle ausgehende Licht ist grün und das von der Probe reflektierte Licht wird rot dargestellt. In b) wird ein Bilderstapel einer porösen Membran mit einer Auflösung von 160 nm/Pixel und einer Größe von $1024 \times 1024 \times 4$ Pixel abgebildet.

sungen $1,0\text{cm} \times 0,5\text{cm}$ bei 50°C für mindestens zwei Stunden unter Umgebungsdruck in einem Ofen getrocknet. Anschließend wurde der spezifische IgG-gebundene Farbstoff (*Goat anti-Mouse IgG (H+L) Cross-Adsorbed Secondary Antibody, Alexa Fluor®555, Invitrogen®, A21422* von der Firma Thermo Fisher) auf eine Konzentration von $40\ \mu\text{g/ml}$ in Adsorptionspuffer ($\text{pH} = 8,0$, $50\ \text{mM}$ Borat, $150\ \text{mM}$ NaCl, 1% Saccharose) verdünnt. Das Membranstück wurde dann in $1\ \text{ml}$ der Farbstofflösung für etwa 48 Stunden bei 8°C inkubiert. Danach wurde die inkubierte Membran mindestens zwei Stunden lang bei 50°C getrocknet, bis sie vollständig trocken ist. Als abschließender Schritt der Probenpräparation wird die getrocknete Membran mit Zeiss Immersionsöl *Immersol 518 F* betröpfelt. Für die anschließende Mikroskopie wurde ein *Leica TCS SPE* Mikroskop verwendet. Passend zum Fluoreszenzfarbstoff *Alexa Fluor®555* wird eine Anregungswellenlänge von $555\ \text{nm}$ gewählt. Zur Rekonstruktion der Membranstruktur wird stets eine Bildauflösung von $160\ \text{nm/Pixel}$ oder $80\ \text{nm/Pixel}$ verwendet, wobei ein Bildausschnitt von 1024×1024 Pixel bzw. 2048×2048 Pixel über die

gesamte Dicke der Membran mikroskopiert wurde. Die Präparation und die Mikroskopie der Membranstruktur wurden von der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* entwickelt und durchgeführt.

3.1.2 Von der Mikroskopie zum digitalen Zwilling

Bildgebende Verfahren wie die Konfokalmikroskopie ermöglichen die Rekonstruktion realer poröser Membranen zu einer vollständig aufgelösten 3D-Struktur. Dazu wird zunächst eine schichtweise dreidimensionale Aufnahme der Struktur erstellt, wie beispielhaft in Abbildung 3.2a) gezeigt. Um anschließend eine Segmentierung in Poren- und Strukturraum durchführen zu können, erfordert es einer Bearbeitung des gewonnenen Bilderstapels, der aus 8-Bit-Bildern besteht. Somit weist jedes Bild $2^8 = 256$ Graustufen auf. Eine solche Bildbearbeitung hat zum Ziel, unerwünschte Effekte wie Intensitätsverläufe entlang des Bilderstapels

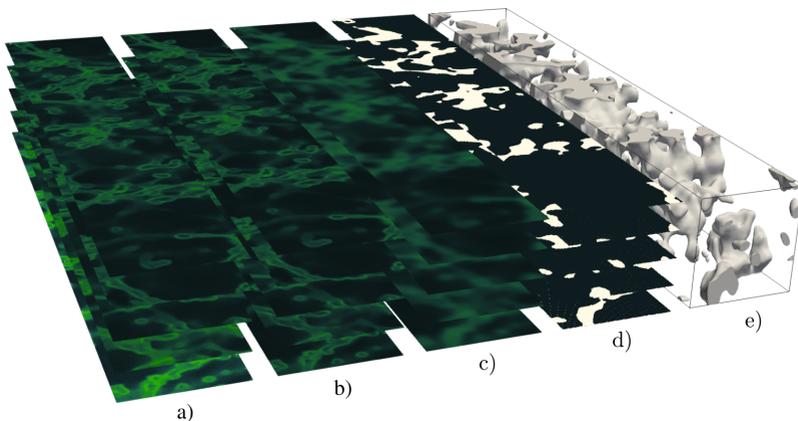


Abbildung 3.2: Schritte zur Erstellung eines digitalen Zwillings basierend auf CLSM-Daten einer realen Membran: Abbildung a) zeigt die Rohaufnahmen der CLSM-Daten, b) die intensitätsgefilterten Daten, c) den Bilderstapel nach der Glättung mit einem Gaußfilter, d) den segmentierten Bilderstapel und Abbildung e) den finalen digitalen Zwilling der grau dargestellten Membranstruktur.

und Bildrauschen zu eliminieren. In der vorliegenden Arbeit wird zunächst jedes Bild des Bilderstapels mit seinem maximalen Graustufenwert normiert. Dadurch wird einem Intensitätsverlauf entlang des Bilderstapels, der in den hier geschilderten Fällen der Membrandicke entspricht, entgegengewirkt, wie in Abbildung 3.2b) gezeigt. Um lokale Schwankungen der Graustufenwerte zu minimieren, wird gemäß der Dissertation von Patrick Altschuh [3] ein Gaußfilter mit einer festen Standardabweichung von $\sigma = 450 \text{ nm}$ gewählt (siehe Abbildung 3.2c)). Zur Unterscheidung des zuvor bearbeiteten Bilderstapels in Vorder- und Hintergrundpixel, bzw. in Struktur- und Porenraum, muss ein Schwellenwert festgelegt werden. Hierfür existieren verschiedene Schwellenwertverfahren, wie die Otsu-Methode [41] oder die Huang-Methode [42]. Da die CLSM-Daten, wie in Abbildung 3.3a) zu erkennen, jedoch keine eindeutig bimodale Verteilung der Graustufenwerte aufweisen, stoßen diese Methoden an ihre Grenzen. Daher wird in dieser Arbeit die Segmentierungsmethode nach Ley et al. [12] angewendet. Um den optimalen Schwellenwert zu bestimmen, wird dabei iterativ vorgegangen. Der Schwellenwert wird schrittweise erhöht und nach jeder Erhöhung die resultierende Porosität der segmentierten Struktur berechnet. Derjenige Schwellenwert, dessen Porosität dem zuvor experimentell ermittelten Wert am nächsten liegt, wird als finaler Schwellenwert definiert. Die experimentelle Porosität wird dabei mittels der Wiegemethode (siehe Abschnitt 4.2.1) ermittelt. Alle Pixel mit

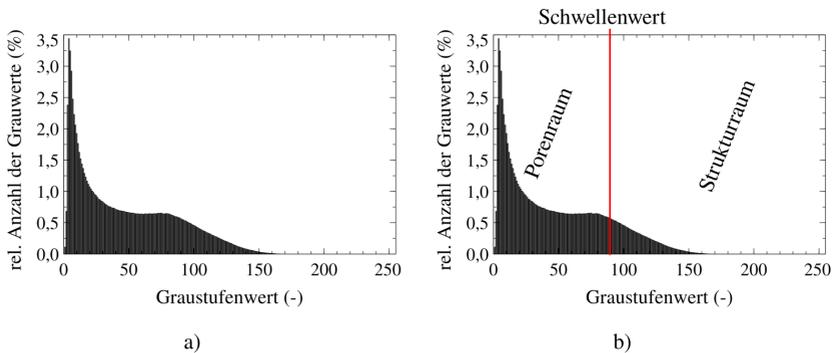


Abbildung 3.3: In a) wird das Histogramm der Graustufenwerte des Bilderstapels aus Abbildung 3.2c) dargestellt. Abbildung b) veranschaulicht schematisch die Segmentierung des Histogramms in Poren- und Strukturraum basierend auf einem Schwellenwert.

einem Graustufenwert unterhalb dieses Schwellenwerts werden zum Porenraum gezählt und alle oberhalb zum Strukturraum, wie in Abbildung 3.3b) angedeutet. Anschließend wird der segmentierte Bilderstapel aus Abbildung 3.2d) derart miteinander verknüpft, dass ein äquidistantes Gitter aus Voxeldaten entsteht. Dieses dreidimensionale Abbild einer realen Membranstruktur ist in Abbildung 3.2e) veranschaulicht.

Die gesamte Bildbearbeitung wird mit dem Bildbearbeitungsprogramm *ImageJ* 1.53 [43] durchgeführt, wohingegen der letzte Schritt der Datenkonvertierung in der Simulationsumgebung PACE3D [44] realisiert wird.

3.1.3 Verwendete Membrandatensätze

In dieser Arbeit werden insgesamt vierzehn unterschiedliche reale Membranproben analysiert, die alle in der medizinischen Diagnostik Verwendung finden und von der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* hergestellt wurden. Die Proben sind alphabetisch mit Großbuchstaben gekennzeichnet. Die Proben A, B und C sind aus der Dissertation von Patrick Altschuh [3] entnommen und basieren auf Computertomografie-Messungen. Die Namensgebung folgt der in der Dissertation verwendeten Konvention. Die übrigen elf Datensätze wurden von der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* mittels Konfokalmikroskopie erfasst, und sind bislang unveröffentlicht.

In [3] wurde detailliert dargelegt, dass zur repräsentativen Darstellung der Heterogenität der porösen Mikrostruktur unter Einbeziehung der gesamten Membrandicke mindestens ein quadratischer Ausschnitt mit einer Kantenlänge von 30 μm erforderlich ist. Bei Betrachtung der in Tabelle 3.1 aufgeführten Kantenlängen der jeweiligen Datensätze wurde dies stets großzügig berücksichtigt. Weiterhin wurde mit Ausnahme der Proben H, I und J in allen Fällen die gesamte Membrandicke in die Analyse einbezogen. Für diese drei spezifischen Proben wurde die Größe der betrachteten Membranstruktur jeweils an das entsprechende Experiment angepasst, wie in Kapitel 7.2.3 beschrieben. Bei der Wahl der Bildauflösung wurde zudem stets darauf geachtet, dass die in [3] ermittelte Grenze von 200 nm/Voxel nicht überschritten wurde. Zudem dokumentiert Tabelle 3.1

Tabelle 3.1: Übersicht der in dieser Arbeit verwendeten Membrandatensätze zur Generierung realer Membranstrukturen. Für jede Membranprobe werden das bildgebende Verfahren, die zugehörige Bildauflösung und die experimentell ermittelte Porosität $\epsilon_{\text{Exp.}}$ dargestellt. Zusätzlich wird die Kantenlänge des analysierten quadratischen Ausschnitts in der lateralen Ebene für jede Probe angegeben.

Probe	Bildgebendes Verfahren	Bildauflösung in nm/Voxel	Exp. Porosität $\epsilon_{\text{Exp.}}$ in (%)	Kantenlänge l in (μm)
A	CT	75	82	75
B	CT	75	82	75
C	CT	75	89	75
D	CLSM	80	88,9	128
E	CLSM	160	83	100
F	CLSM	160	86	100
G	CLSM	160	82	100
H	CLSM	190	85	-
I	CLSM	190	83,2	-
J	CLSM	200	82	-
K	CLSM	160	85	100
L	CLSM	160	84,7	100
M	CLSM	160	83	100
N	CLSM	160	85	100

für jede Membranprobe die experimentell ermittelte Porosität $\epsilon_{\text{Exp.}}$, die für die Rekonstruktion der digitalen Zwillinge erforderlich ist.

3.2 Algorithmusbasierte Generierung

In diesem Abschnitt werden zwei unterschiedliche Methoden zur algorithmusbasierten Generierung poröser Membranstrukturen vorgestellt. Die erste baut auf einer Voronoizerlegung auf, während die zweite auf einer Wasserscheidentransformation einer rekonstruierten Membran beruht (vgl. Kapitel 3.1.2).

Durch die Anwendung dieser algorithmusbasierten Generierungsmethoden können verschiedene poröse Membranstrukturen mit anwendungsspezifischen Anforderungen generiert werden. Diese Methoden ermöglichen die gezielte Manipulation von Porengrößen und -verteilungen sowie Steggrößen und -verteilungen, um die Membraneigenschaften für bestimmte Anwendungen zu optimieren.

3.2.1 Basierend auf einer Voronoizerlegung

Im Folgenden wird der Generierungsalgorithmus von Altschuh et al. [45] vorgestellt, der auf einer Voronoizerlegung basiert. Dieser Algorithmus wurde für die gezielte Generierung von porösen Membranstrukturen mit definierten morphologischen Eigenschaften entwickelt. Die Funktionsweise des Algorithmus wird im folgenden Kapitel grundlegend zusammengefasst. Für einen tieferen Einblick wird auf die Dissertation von Patrick Altschuh [3] oder die Veröffentlichung [45] von Altschuh et al. verwiesen. Im Wesentlichen arbeitet der Generierungsalgorithmus nach folgendem Schema: i) Zunächst wird ein definiertes voxelbasiertes Gebiet in Abhängigkeit einer vorgegebenen Punktzahl in Voronoi-Regionen zerlegt. Voronoi-Regionen sind mathematische Konstrukte, die dazu dienen, einen Raum in Bereiche aufzuteilen, die jeweils einem bestimmten Punkt in diesem Raum am nächsten liegen. Jeder Punkt definiert dabei eine eigene Region, die durch die Menge aller Punkte begrenzt wird, die diesem näher liegen als allen anderen Punkten. Die Grenzen dieser Regionen sind die sogenannten Voronoi-Kanten, die sich aus den Mittelsenkrechten zwischen den jeweils benachbarten Punkten ergeben. ii) Im zweiten Schritt werden die Voxel ermittelt, die entlang einer Kante liegen, an der sich mindestens drei Voronoi-Regionen treffen. An diesen Stellen werden Kugeln mit einem definierten Radius platziert, um eine poröse Struktur zu generieren. Diese Kugeln werden in einem Nachbearbeitungsschritt miteinander verschmolzen, um die gewünschte Stegstruktur zu erhalten. Mithilfe dieses Generierungsalgorithmus können Strukturen mit einem festgelegten Stegdurchmesser und einer spezifischen Porosität erzeugt werden. Die Anzahl der Poren wird durch die Anzahl der platzierten Voronoi-Regionen beziehungsweise durch die Punktzahl bestimmt. Ein großer Vorteil dieser Methode

besteht darin, dass durch eine gezielte Streckung der Voronoi-Regionen Strukturen mit gezielter Anisotropie erzeugt werden können. Abbildung 3.4 stellt eine Auswahl solcher Strukturen dar.

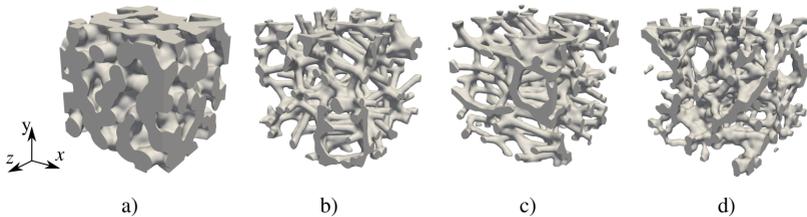


Abbildung 3.4: Vier Strukturen generiert durch den Voronoi-Algorithmus aus Abschnitt 3.2.1. In Abbildung a) ist eine Struktur mit 40 % Porosität dargestellt, b) zeigt dieselbe Struktur mit einer Porosität von 80 %. In c) wird eine gestreckte Struktur in x-Richtung gezeigt und in d) eine Struktur mit variierenden Stegdurchmesser abgebildet.

3.2.2 Basierend auf einer Wasserscheidentransformation

Der in diesem Abschnitt vorgestellte Generierungsalgorithmus wurde im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und basiert auf den im weiteren Verlauf erläuterten Schritten. Ausgehend von einer realen Struktur, die mithilfe der Methode aus Kapitel 3.1.2 generiert wurde, wird zu Beginn eine markerbasierte Wasserscheidentransformation durchgeführt, die den Porenraum in definierte Segmente unterteilt. Die Implementierung der markerbasierten Wasserscheidentransformation wird im nachfolgenden Abschnitt detailliert erläutert. Basierend auf dieser Wasserscheidentransformation wird die Struktur generiert. Dabei werden entlang der Kanten, an denen drei oder mehr unterschiedliche Segmente direkt aneinanderstoßen, Kugeln mit einem zuvor definierten Radius platziert. Anhand der dadurch erzeugten Struktur wird anschließend ein Graph erstellt. Punkte, an denen mehrere Stege zusammenlaufen, werden als Knoten definiert und die Verbindungen zwischen den Knoten als Kanten festgelegt. Zuletzt wird überprüft, welche Kanten entfernt werden können, ohne dass dabei die Eigenschaft der direkten

oder indirekten Verbindung aller Knoten verloren geht. Nach Ermittlung dieser Kanten können gezielt Stege entfernt werden, die dieses Konnektivitätskriterium erfüllen. Dadurch kann bei gleichbleibendem mittleren Stegradius die Porosität und somit auch der mittlere geometrische Porenradius eingestellt werden.

Implementierung einer markerbasierten Wasserscheidentransformation

Die markerbasierte Wasserscheidentransformation, die im Zuge dieser Arbeit in die Softwareumgebung PACE3D implementiert wurde, beruht auf dem *SNOW-Algorithmus* (subnetwork of the oversegmented watershed) von Jeff Gostick [46] und besteht aus den nachfolgenden fünf Schritten, welche anhand einer zweidimensionalen Struktur in Abbildung 3.5 zusätzlich veranschaulicht werden.

I. Erstellung und Glättung eines Euklidischen Distanzfeldes (GEDF)

Ein binäres Bild einer Struktur, wie beispielhaft in Abbildung 3.5a) dargestellt, dient als Ausgangspunkt. Zunächst wird für jeden Voxel beziehungsweise Pixel im Porenraum ein Euklidisches Distanzfeld (EDF) berechnet. Das EDF ist eine mathematische Funktion, die in der Bildverarbeitung und Computergrafik verwendet wird, um den Abstand eines jeden Pixels oder Voxels zu einem bestimmten Objekt zu berechnen. Es basiert auf dem Euklidischen Abstandskonzept, das die Entfernung zwischen zwei Punkten im Raum misst. Das für diese Arbeit angewendete EDF basiert auf der Publikation von Saito et al. [47]. Darüber hinaus wird das EDF mithilfe eines Gauß-Filters mit einer Varianz von $\sigma = 0,35$ [46] geglättet und somit in ein geglättetes Euklidisches Distanzfeld (GEDF) überführt. Das GEDF des Porenraums mit der dazugehörigen Struktur ist in Abbildung 3.5b) visualisiert.

II. Bestimmung lokaler Maxima im Distanzfeld

Aufbauend auf der Glättung des Euklidischen Distanzfeldes werden die lokalen Maxima im GEDF bestimmt. Hierfür erfolgt zunächst die Berechnung der

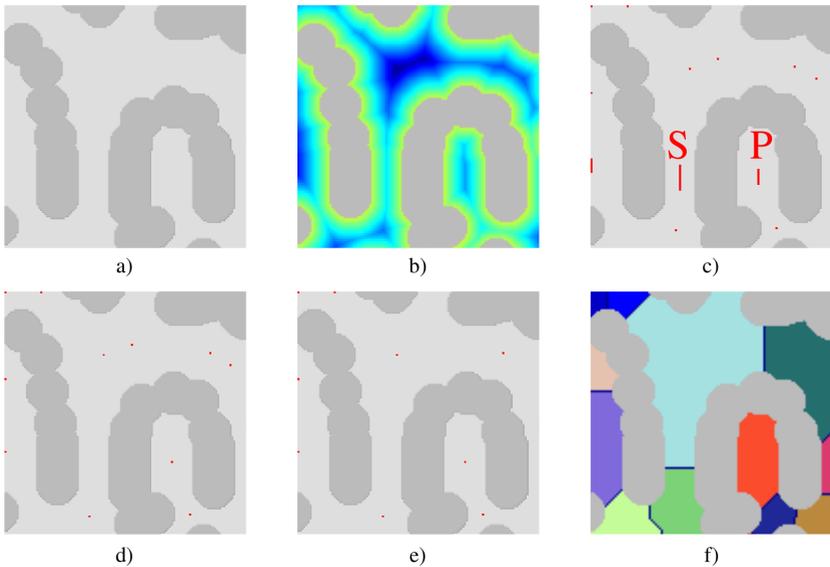


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der einzelnen Schritte des *SNOW-Algorithmus* [46] in 2D. In a) ist die initiale 2D-Struktur zu sehen, die segmentiert werden soll. Die dunkelgraue Farbe repräsentiert die Struktur, während der Porenraum in hellgrau dargestellt ist. Abbildung b) zeigt die Überlagerung des geglätteten Euklidischen Distanzfelds und der Struktur. In c) sind die initial detektierten lokalen Maxima rot markiert, wobei auch ein Sattel und ein Plateau erkennbar sind. d) zeigt die lokalen Maxima, nachdem Sättel und Plateaus eliminiert wurden. In e) wurden nahegelegene Maxima zusammengefasst. Schließlich wird in f) die resultierende Segmentierung basierend auf der markerbasierten Wasserscheidentransformation präsentiert. Jeder Pixel wird dabei einem Segment über eine entsprechende Markierung eindeutig zugeordnet.

Grauwertdilatation des GEDF unter Verwendung eines kreisförmigen Strukturelements mit einem Radius von fünf Pixeln. Es ist anzumerken, dass Gostick [46] umfangreiche Untersuchungen angestellt hat, um den optimalen Standardwert für den Radius von fünf Pixeln zu bestimmen. Anschließend wird das GEDF pixelweise mit der Grauwertdilatation verglichen und Pixelpaare mit demselben Wert werden in einem neuen Binärbild als lokale Maxima gespeichert. In Abbildung 3.5c) sind die so ermittelten lokalen Maxima dargestellt.

III. Eliminierung von Maxima auf Plateaus und Sätteln

Nach der initialen Identifizierung lokaler Maxima kommt es irrtümlich zur Detektion von Plateaus und Sätteln an Orten, wo sich mehrere Voxel beziehungsweise Pixel in direkter Nähe zueinander mit identischen EDF-Werten befinden. Sattelpunkte beschreiben vermeintliche lokale Maxima, die sich zwischen zwei größeren Maxima befinden, wohingegen Plateaupunkte eine Anhäufung lokaler Maxima beschreiben, wie in Abbildung 3.5c) illustriert. Um eine nachfolgende Übersegmentierung zu vermeiden, müssen sie erkannt und eliminiert werden. Die Methode von Gostick [46] reduziert, wie in Abbildung 3.5d) dargestellt, Maxima, welche sich auf einem Plateau befinden, auf einen einzigen Voxel, während Maxima auf Sätteln vollständig entfernt werden.

IV. Zusammenfassung nahegelegener Maxima

Wenn der Euklidische Abstand zwischen zwei Maxima kleiner ist als ihre Abstände zur Strukturoberfläche, wird das Maxima entfernt, welches den kürzeren Abstand zur Strukturoberfläche aufweist. Falls beide Maxima den gleichen Abstand haben, wird zufällig eines der beiden eliminiert. Dadurch werden alle Anhäufungen von Maxima auf eine Markierung reduziert. Ein Beispiel dafür ist in Abbildung 3.5e) dargestellt.

V. Segmentierung des Porenraums

Alle gefilterten Maxima werden zusammen mit dem EDF an die markerbasierten Wasserscheidentransformation übergeben, wobei unter Verwendung der Maxima als Marker die Segmentierung des Porenraums durchgeführt wird. Hierfür wird der Algorithmus von Pierre Soille [36], der in der ITK-Bibliothek [48] enthalten ist, verwendet. Als Ergebnis der Segmentierung wird jeder Voxel bzw. Pixel eindeutig einem Segment bzw. einem Wert einer entsprechenden Markierung zugeordnet, wie Abbildung 3.5f) veranschaulicht. Abbildung 3.6b) zeigt das Ergebnis der markerbasierten Segmentierung des Porenraums der Struktur

aus Abbildung 3.6a) in 3D. Bei einer Verwendung dieses Algorithmus bestimmt die Anzahl der Marker die Menge der Segmente in der resultierenden Abbildung.

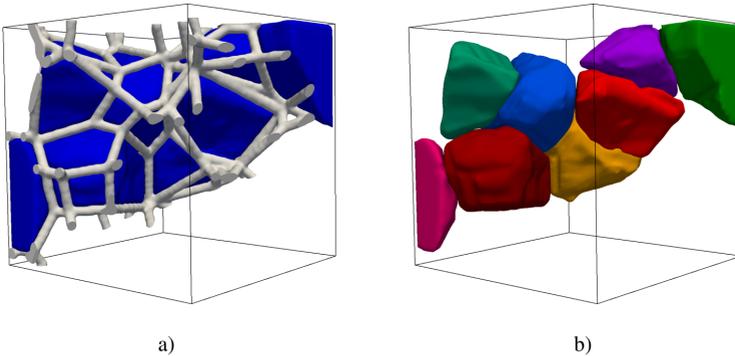


Abbildung 3.6: Abbildung a) zeigt einen Teilausschnitt einer porösen 3D-Struktur. Der Porenraum ist blau und die Struktur grau dargestellt. In b) ist die entsprechende Segmentierung des Porenraums abgebildet, die auf der markerbasierten Wasserscheidentransformation basiert.

Validierung *SNOW-Algorithmus*

Der implementierte *SNOW-Algorithmus* wird validiert, indem Strukturen mit unterschiedlichen Voronoi punktzahlen generiert werden. Dies geschieht mithilfe des in Kapitel 3.2.1 beschriebenen Algorithmus. Nach der Generierung wird der Porenraum segmentiert und die Anzahl extrahierter Marker wird mit der vorab definierten Voronoi punktzahl verglichen. Eine korrekte Implementierung der Schritte I-IV sollte keine Abweichungen zwischen den beiden Zahlen aufweisen. Abbildung 3.7a) zeigt den Vergleich der vorgegebenen Voronoi punkte mit der entsprechenden Anzahl extrahierter Marker. Wie zu erkennen ist, stimmen die Werte für alle untersuchten Strukturen exakt überein, was darauf hinweist, dass die Schritte I-IV erfolgreich validiert wurden. Um den V. Schritt zu verifizieren, kann ein visueller Vergleich zwischen dem ursprünglichen Voronoi-Gebiet und der durch den *SNOW-Algorithmus* extrahierten Segmentierung herangezogen werden. Beispielhaft wird dies in Abbildung 3.7b) und Abbildung 3.7c) für

eine 2D-Ansicht dargestellt, wobei eine deutliche Übereinstimmung erkennbar wird. Es sei jedoch anzumerken, dass eine exakte Übereinstimmung nicht zu erwarten ist, da die in Abbildung 3.7c) dargestellte extrahierte Segmentierung auf der zuvor konstruierten Struktur beruht.

Zeichnen der Membranstruktur

Zur Verdeutlichung der folgenden Schritte, werden diese in Abbildung 3.8 für den zweidimensionalen Fall veranschaulicht. Mithilfe der markerbasierten Wasserscheidentransformation wird der Porenraum einer realen rekonstruierten Membran (vgl. Abschnitt 3.1.2) segmentiert. Diese in Abbildung 3.8a) dargestellte Segmentierung wird für die Konstruktion der gewünschten Struktur genutzt. Im

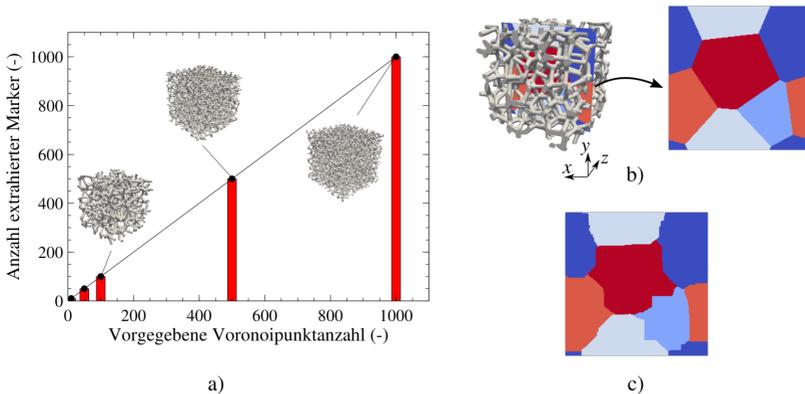


Abbildung 3.7: Validierung des *SNOW-Algorithmus*: In a) wird die Gegenüberstellung der Voronoi-Punktzahl und der extrahierten Anzahl an Markern von fünf $200 \times 200 \times 200$ Voxel großen Strukturen gezeigt. Wie zu sehen ist, stimmen beide Werte exakt überein. In b) ist links die Struktur mit einer Voronoi-Punktzahl von 10 Punkten dargestellt. Zusätzlich wird rechts exemplarisch ein 2D-Schnitt des dazugehörigen Voronoibereiches an der Position $z = 84$ gezeigt, die unterschiedlichen Farben entsprechen dabei den jeweiligen Voronoiregionen. In c) ist ebenfalls ein 2D-Schnitt an der Position $z = 84$ dargestellt, diesmal jedoch von der Segmentierung des Porenraums der Struktur aus Abbildung b), wobei jede Farbe ein zusammenhängendes Segment abbildet. Hierbei ist eine deutliche Übereinstimmung mit der dazugehörigen Voronoizerlegung aus b) ersichtlich.

dreidimensionalen Raum werden, wie in Abbildung 3.8b) dargestellt, initial Kugeln an den Voxelpositionen platziert, bei denen in der 26er-Nachbarschaft drei oder mehr unterschiedliche Segmente vorhanden sind. Diese Kugeln werden in einem Nachbearbeitungsschritt miteinander verschmolzen, um die gewünschte initiale Stegstruktur zu erhalten. Der Radius der Kugeln kann definiert und durch Festlegung einer Verteilungsfunktion variiert werden.

Um die Porosität bei gleichbleibendem Stegradius zusätzlich zu erhöhen, wird in einem nachfolgenden Schritt ein Graph erstellt, der die zuvor erstellte initiale Struktur wie folgt repräsentiert: Die Strukturstege werden durch Knoten im erzeugten Graphen dargestellt, während die Verbindungen zwischen den Stegen durch Kanten repräsentiert werden. Das Entfernen eines Knotens aus dem Graphen entspricht dem eliminieren eines Steges der initialen Struktur, was zu einer Erhöhung der Porosität führt. Es ist jedoch von Bedeutung, zu berücksichtigen, dass Knoten, deren Entfernung die direkte oder indirekte Verbindung aller Knoten im Graphen unterbinden würde, nicht eliminiert werden dürfen, um die Konnektivität der Membranstruktur sicherzustellen. Ein Knoten im Graphen wird durch die eindeutigen Kennzeichnungen der angrenzenden Segmente definiert. Im dreidimensionalen Raum entspricht dies den kombinierten Kennzeichnungen von genau drei benachbarten Segmenten. Für jeden Voxel im Gebiet wird überprüft, ob in der unmittelbaren Nachbarschaft mindestens drei verschiedene Segmente vorhanden sind. Wenn exakt drei unterschiedliche Werte vorliegen, wird ein Knoten mit einer Kennzeichnung erzeugt, welche sich aus den Werten der benachbarten Segmente ergibt. Wenn mehr als drei unterschiedliche Werte vorliegen, handelt es sich um die Verbindung von mindestens zwei Stegen, was zwei Teilschritte erforderlich macht. Zuerst werden Knoten für alle möglichen erkannten Stege erzeugt. Die Kennzeichnungen der Knoten ergeben sich aus jeder möglichen Kombination von jeweils drei der erkannten benachbarten Segmentwerte. Anschließend werden Kanten zwischen allen neu erstellten Knoten gebildet. Der erzeugte Graph wird in Abbildung 3.8c) veranschaulicht, wobei die grünen Knoten diejenigen repräsentieren, die entfernt werden können, während die roten Knoten erhalten bleiben. Nachdem ein Knoten entfernt wurde, wird die Struktur erneut gezeichnet (siehe Abbildung 3.8d)) und die resultierende Porosität berechnet. Sollte diese mit der gewünschten Porosität übereinstimmen, wird

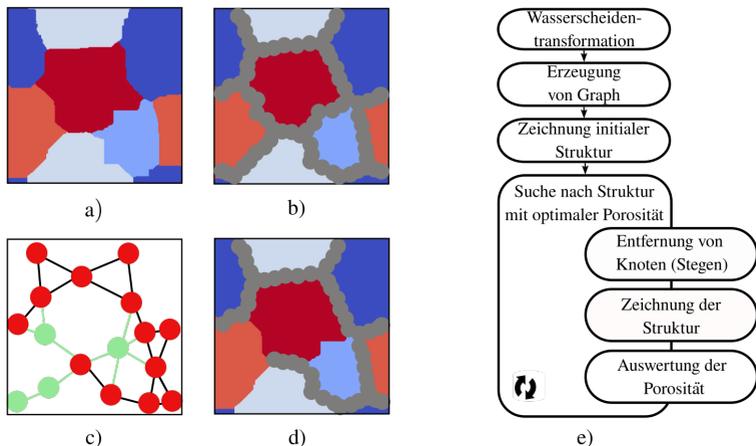


Abbildung 3.8: Zweidimensionale Veranschaulichung der Prozessschritte zur Zeichnung der Struktur: Abbildung a) zeigt die initiale Segmentierung, die auf einer markerbasierten Wasserscheidentransformation beruht, die durch den *SNOW-Algorithmus* ermöglicht wird. In b) ist die initial gezeichnete Struktur grau dargestellt. In c) wird der entsprechende Graph gezeigt, wobei Kreise die Knoten repräsentieren und schwarze Linien die Kanten darstellen. Grüne Knoten können dabei entfernt werden, ohne die Konnektivität der Struktur zu beeinträchtigen. Abbildung d) zeigt die neu gezeichnete Struktur, bei der Knoten bzw. Stege entfernt wurden, um die Porosität bei gleichbleibendem Stegradius zu erhöhen. Der gesamte iterative Prozess wird schematisch in e) dargestellt.

der Prozess beendet, andernfalls werden weitere Knoten entfernt, bis das gewünschte Ergebnis erreicht ist. Dieser iterative Prozess wird in Abbildung 3.8e) schematisch dargestellt.

4 Methoden zur Strukturanalyse

Das vorliegende Kapitel erörtert die in dieser Arbeit angewandten Methoden zur Charakterisierung poröser Strukturen. Zuerst werden die computergestützten Verfahren beschrieben, die auf der Analyse digitaler Abbilder poröser Materialien basieren. Anschließend werden die für diese Studie relevanten experimentellen Techniken detailliert dargelegt.

4.1 Computergestützte Charakterisierung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit digitalen Zwillingen poröser Strukturen, die als binäre voxelbasierte Daten vorliegen. Diese Daten können entweder durch algorithmusbasierte Methoden oder durch Segmentierung realer Bilddaten gewonnen werden. Der jeweilige digitale Zwilling erstreckt sich dabei über einen dreidimensionalen Raum $\Omega \in \mathbb{R}^3$, der in einem kartesischen Koordinatensystem dargestellt wird und die Größe von $N_x \times N_y \times N_z$ Voxeln besitzt. Dies wird exemplarisch anhand einer Struktur in Abbildung 4.1a) visualisiert. Dabei nimmt jeder Voxel $P(x, y, z)$ entweder den Wert 1 für die Struktur oder den Wert 0 für den Porenraum an.

$$P(x, y, z) = \begin{cases} 1 & \text{für den Strukturraum} \\ 0 & \text{für den Porenraum} \end{cases} \quad (4.1)$$

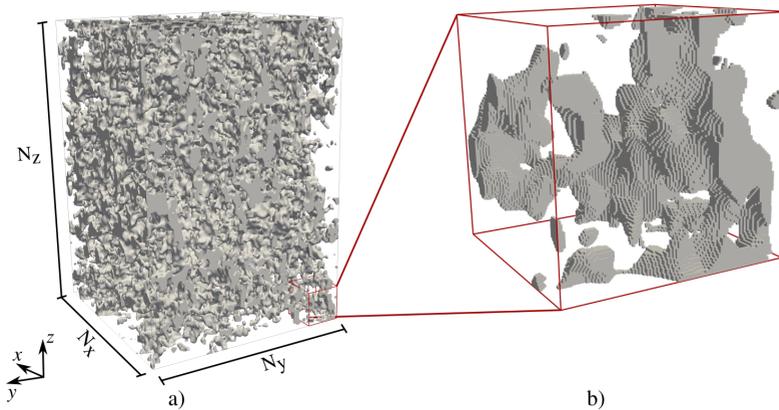


Abbildung 4.1: In a) ist eine binäre voxelbasierte Struktur im kartesischen Koordinatensystem abgebildet. Die Struktur ist grau gekennzeichnet. Abbildung b) verdeutlicht anhand eines kleineren Ausschnitts den voxelbasierten Charakter.

4.1.1 Porosität

Wie in Kapitel 2.1.3 beschrieben, ist die Porosität ε als das Verhältnis des Porenvolumens V_p und dem Gesamtvolumen V definiert:

$$\varepsilon = \frac{V_p}{V}. \quad (4.2)$$

Da die digitalen Zwillinge poröser Membranstrukturen wie zuvor erwähnt als binäre Voxelstrukturen vorliegen, kann die Porosität ε berechnet werden, indem alle Porenvoxel V_p aufsummiert und das Verhältnis zur Gesamtzahl aller Voxel V bestimmt wird. In Abbildung 4.1b) wird ein Ausschnitt der binären voxelbasierten Struktur verdeutlicht, wobei die grauen Voxel der Struktur entsprechen.

4.1.2 Geometrischer Poren- und Stegradius

Um den mittleren geometrischen Porenradius r_p und die Porengrößenverteilung von digitalen Zwillingen zu ermitteln, wird ein in der Softwareumgebung PACE3D implementierter Algorithmus verwendet. Dieser basiert auf den folgenden drei Schritten: i) Zunächst wird für jeden Voxel im Porenraum ein Euklidisches Distanzfeld (EDF) berechnet. Das für diese Arbeit angewendete EDF basiert auf der Arbeit von Saito et al. [47] und wird exemplarisch für einen geschlossenen Porenraum in Abbildung 4.2b) dargestellt. ii) Anschließend wird mithilfe eines Skelettierungsalgorithmus und des zuvor berechneten EDF eine Medial-Achse erstellt, wobei jeder Voxel auf dieser Medialen Achse den größtmöglichen Radius einer Kugel im Porenraum beschreibt. Der für diese Arbeit angewendete Skelettierungsalgorithmus beruht dabei auf der Methode von Palagyi et al. [49] und wird ebenfalls exemplarisch für einen geschlossenen Porenraum in Abbildung 4.2b) dargestellt. iii) Zum Schluss werden alle EDF-Werte, die zur Medialen Achse gehören, ausgegeben. Durch die Berechnung des arithmetischen Mittelwerts kann der mittlere geometrische Porenradius ermittelt werden. Unter Einbeziehung aller extrahierten Werte lässt sich zudem eine Porengrößenverteilung beschreiben.

Diese Methode kann nicht nur auf den Porenraum, sondern auch auf den Strukturbereich angewendet werden, wodurch ein mittlerer Stegradius r_s und eine Stegradienverteilung ermittelt werden kann. Abbildung 4.3 verdeutlicht dies anhand

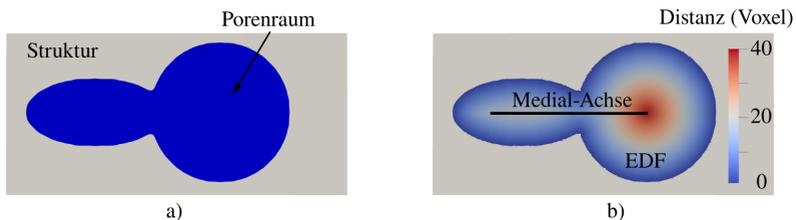


Abbildung 4.2: Zur Veranschaulichung eines Euklidischen Distanzfeldes wird in a) ein vereinfachter geschlossener 2D Porenraum dargestellt. In b) ist das zugehörige Euklidische Distanzfeld des Porenraums sowie die mittels des Skelettierungsalgorithmus erzeugte Medial-Achse dargestellt.

einer komplexen porösen Membranstruktur, bei der die Verteilung der ermittelten Werte sowohl für den Porenraum als auch für den Strukturbereich gezeigt wird.

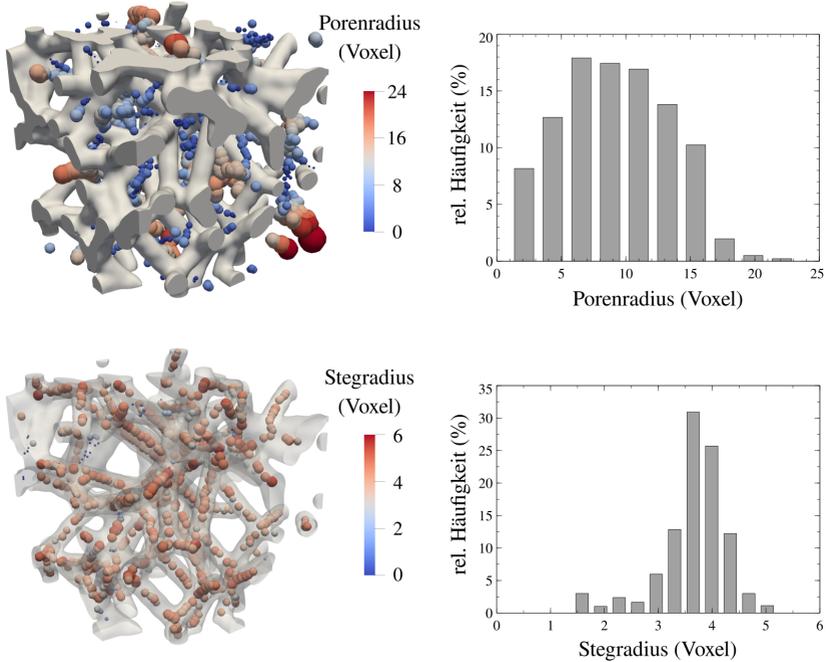


Abbildung 4.3: Die obere Abbildung zeigt links eine poröse Struktur und die Verteilung der Porenradien entlang der Medialen Achse, rechts dazu wird die dazugehörige Verteilung der ermittelten Porenradien als Histogramm dargestellt. Im unteren Bild wird das Selbe für den Strukturraum und die darin ermittelten Stegradien abgebildet.

4.1.3 Strukturelle Anisotropie

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Methode zur Messung der strukturellen Anisotropie entwickelt und in die Simulationssoftware PACE3D integriert. Dabei wird der Porenraum einer porösen Struktur mithilfe der markerbasierten Wasserscheidentransformation aus Kapitel 3.2.2 in unterschiedliche Porensegmente

unterteilt. Für die in Abbildung 4.4a) dargestellte Struktur wird dies exemplarisch für drei

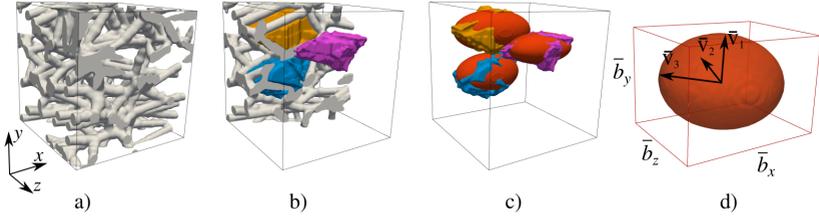


Abbildung 4.4: Visualisierung der Methode zur Bestimmung der strukturellen Anisotropie. Dabei werden für die poröse Struktur aus Abbildung a) beispielhaft drei segmentierte Poren in b) gezeigt. In c) sind die an die einzelnen Porensegmente angepassten Ellipsoide dargestellt, und in d) wird das aus allen ermittelten Ellipsoiden berechnete gemittelte Ellipsoid zusammen mit dem zugehörigen Begrenzungsrahmen präsentiert.

Segmente in Abbildung 4.4b) gezeigt. Zunächst werden alle m Segmente identifiziert, die keinen Kontakt zu den Gebietsrändern haben und somit vollständig abgebildet werden. Anschließend wird für jedes Segment $i \in m$ der Trägheitstensor \mathbf{M}_i nach folgender Formel berechnet [50]

$$\mathbf{M}_i = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n \begin{bmatrix} (y_k^2 + z_k^2) & -x_k y_k & -x_k z_k \\ -y_k x_k & (x_k^2 + z_k^2) & -y_k z_k \\ -z_k x_k & -z_k y_k & (x_k^2 + y_k^2) \end{bmatrix}. \quad (4.3)$$

Hierbei beschreibt n die Anzahl aller Voxel, die das Segment i beinhaltet. x_k, y_k und z_k beschreiben die Position des Voxels k , bezogen auf das ortsfeste Koordinatensystem xyz . Gemäß Chaudhuri et al. [51], kann durch die Berechnung der Eigenvektoren $\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2$ und \mathbf{v}_3

$$\mathbf{v}_1 = (v_{11}, v_{12}, v_{13})^T \quad (4.4)$$

$$\mathbf{v}_2 = (v_{21}, v_{22}, v_{23})^T \quad (4.5)$$

$$\mathbf{v}_3 = (v_{31}, v_{32}, v_{33})^T \quad (4.6)$$

sowie der Eigenwerte $\lambda_1 < \lambda_2 < \lambda_3$ des Trägheitstensors \mathbf{M} eines Objekts ein Ellipsoid angepasst werden. Dabei geben die Eigenvektoren die Ausrichtung der Hauptachsen der angepassten Ellipsoide an, die dazugehörigen Halbachsen a , b und c können wie folgt berechnet werden

$$a^2 = \frac{5}{2}(\lambda_2 + \lambda_3 - \lambda_1) \quad (4.7)$$

$$b^2 = \frac{5}{2}(\lambda_1 + \lambda_3 - \lambda_2) \quad (4.8)$$

$$c^2 = \frac{5}{2}(\lambda_1 + \lambda_2 - \lambda_3). \quad (4.9)$$

Für die drei exemplarischen Segmente aus Abbildung 4.4b) wird dies in Abbildung 4.4c) veranschaulicht. Dies wird auf alle Segmente m des Porenraums angewendet, wobei ein gemittelttes Ellipsoid berechnet wird. Realisiert wird dies, indem basierend auf dem mittleren Trägheitstensor $\bar{\mathbf{M}}$

$$\bar{\mathbf{M}} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \mathbf{M}_i \quad (4.10)$$

eine Eigenwertzerlegung durchgeführt wird, womit sich die Eigenvektoren $\bar{\mathbf{v}}_1, \bar{\mathbf{v}}_2$ und $\bar{\mathbf{v}}_3$ sowie die Eigenwerte $\bar{\lambda}_1, \bar{\lambda}_2$ und $\bar{\lambda}_3$ ergeben. Mit den Gleichungen 4.7-4.9 werden die dazugehörigen Halbachsen \bar{a}, \bar{b} und \bar{c} berechnet.

Um eine Aussage über die strukturelle Anisotropie bezogen auf das Ortsfeste Koordinatensystem xyz treffen zu können, wurde für die folgende Arbeit der kleinste Begrenzungsrahmen (engl. bounding box) um das gemittelte Ellipsoid berechnet. Dies wird in Abbildung 4.4d) dargestellt. Die Kantenlängen \bar{b}_x, \bar{b}_y und \bar{b}_z lassen sich dabei folgendermaßen berechnen [52]

$$\bar{b}_x = 2\sqrt{(\bar{a}\bar{v}_{11})^2 + (\bar{b}\bar{v}_{21})^2 + (\bar{c}\bar{v}_{31})^2} \quad (4.11)$$

$$\bar{b}_y = 2\sqrt{(\bar{a}\bar{v}_{12})^2 + (\bar{b}\bar{v}_{22})^2 + (\bar{c}\bar{v}_{32})^2} \quad (4.12)$$

$$\bar{b}_z = 2\sqrt{(\bar{a}\bar{v}_{13})^2 + (\bar{b}\bar{v}_{23})^2 + (\bar{c}\bar{v}_{33})^2}. \quad (4.13)$$

Die Kantenlängen können anschließend für eine quantitative Beurteilung der strukturellen Anisotropie verwendet werden, wobei der aus Gleichung 2.3 bekannte Grad der Anisotropie DA angewendet werden kann. Weiterhin kann dieser Ansatz verwendet werden um mit \bar{b}_x , \bar{b}_y und \bar{b}_z einen geometrischen Porenradius zu bestimmen. Im Folgenden wird die Aussagekraft der Messung der strukturellen Anisotropie anhand vereinfachter Gitterstrukturen validiert.

Validierung

Zur Validierung wurden insgesamt zwölf vereinfachte dreidimensionale Gitterstrukturen, welche eine variierende Streckung in die y -Richtung aufweisen, generiert. Dabei wird wie in Abbildung 4.5a) gezeigt, die Kantenlänge b variiert, während die verbleibenden Kantenlängen a und c konstant bleiben. Stets gilt

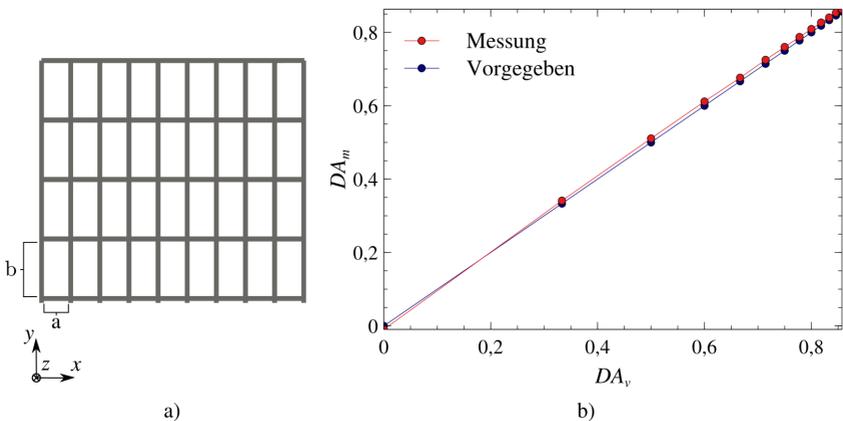


Abbildung 4.5: In a) wird eine Gitterstruktur zur Validierung der Messung der strukturellen Anisotropie dargestellt. Bei der in b) gezeigten Gegenüberstellung des gemessenen und bekannten Grad der Anisotropie wurde die Kantenlänge b der Gitterstruktur variiert, während die übrigen Kantenlängen konstant gehalten wurden.

$b > a$ und $a = c$. Anschließend wird die zuvor beschriebene Methode zur Messung der strukturellen Anisotropie auf jede Struktur angewendet, wobei in Abbildung 4.5b) der gemessene Grad der Anisotropie DA_m

$$DA_m = 1 - \frac{\bar{b}_x}{\bar{b}_y} \quad (4.14)$$

dem vorgegebenen Grad der Anisotropie DA_v

$$DA_v = 1 - \frac{a}{b} \quad (4.15)$$

gegenübergestellt wird. Hierbei zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung, wobei die relative Abweichung zwischen Istwert DA_m und dem Sollwert DA_v stets unter 2,4 % liegt. Damit kann die hier vorgestellte Methode als valide angenommen werden.

4.1.4 Spezifische Oberfläche

Die intrinsische Oberfläche S von porösen Membranstrukturen, wie sie in Abbildung 4.6 in orange hervorgehoben ist, ist für den kapillaren Flüssigkeitstransport innerhalb dieser Strukturen von großer Bedeutung. Sie ist nicht nur eine

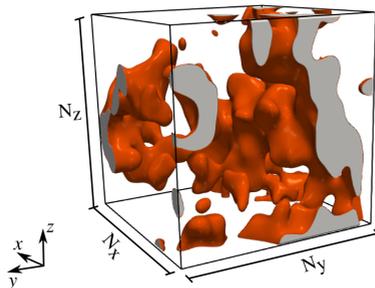


Abbildung 4.6: Für den in Abbildung 4.1b) dargestellten Ausschnitt einer porösen Membranstruktur wird die intrinsische Oberfläche S in orange hervorgehoben.

wesentliche Ursache für den viskosen Reibungswiderstand, sondern bietet auch die notwendige Fläche für die Immobilisierung von Antikörpern im Bereich der Test- und Kontrolllinie. Bei der computergestützten Ermittlung der Oberfläche in voxelbasierten binären Strukturen existieren verschiedene Ansätze. Die simpelste Methode ist das Zählen der Voxelflächen an den Grenzen zwischen den zwei Phasen. In dieser Arbeit, die sich auf Strukturen mit einem gleichmäßigen Voxelgitter beschränkt, kann der genannte Ansatz jedoch zu einer erheblichen Überschätzung der Oberfläche führen – beispielsweise um etwa 50 Prozent bei einer Kugeloberfläche [53]. Dies liegt daran, dass die Oberflächen der Voxel stets entlang der kartesischen Koordinaten ausgerichtet sind. Der hier verwendete Ansatz dagegen basiert auf der Aufsummierung der normierten Flächennormalen $|\mathbf{n}(\mathbf{x})|$ eines jeden Flächenelements an der Stelle $\mathbf{x} \in \Omega_s$, wobei Ω_s die Grenzfläche zwischen den zwei Phasen beschreibt [3]. Somit lässt sich die Oberfläche S mit der normalisierten Größe des Flächenelements \hat{S}_P mit

$$S = \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \sum_{k=1}^{N_z} \mathbf{n}(\mathbf{x}) \hat{S}_P = \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \sum_{k=1}^{N_z} |\nabla I(\mathbf{x})| \hat{S}_P \quad (4.16)$$

berechnen. Dabei werden die Flächennormalen durch den normalisierten Gradienten $|\nabla I(\mathbf{x})|$ mittels zentralen Differenzen berechnet und mit Δx , Δy und $\Delta z = 1$ ergibt sich $\hat{S}_P = 1$. Die spezifische Oberfläche, bezeichnet als S_V , wird dann schlussendlich ermittelt, indem S mit der Gesamtzahl der Voxel V im Gebiet Ω normiert wird

$$S_V = \frac{S}{V}. \quad (4.17)$$

Eine detaillierte Analyse des Einflusses der Bildauflösung auf die Zuverlässigkeit der Methode bei porösen Membranstrukturen ist in [3] zu finden. Die Untersuchung zeigt, dass bei Bildauflösungen von $\leq 200 \text{ nm/Voxel}$ die Berechnung der Oberfläche von der Bildauflösung unabhängig ist.

4.1.5 Tortuosität

Die simulative Berechnung der richtungsabhängigen Tortuosität beruht auf der Lösung des elektrischen Potentials im Porenraum einer porösen Struktur. Dazu wird der örtliche Gradient des Potentialfeldes $\nabla\Phi$ innerhalb des Porenraums unter Verwendung folgender Laplace-Gleichung

$$\nabla \cdot (-\sigma_P \nabla \Phi) = 0 \quad (4.18)$$

berechnet. Hierbei wird die intrinsische Leitfähigkeit σ_P als gegeben angenommen und als anfängliche Randbedingung wird eine Potentialdifferenz von $\Delta\Phi = 1,0 \text{ V}$ an zwei gegenüberliegenden Gebietsrändern festgelegt. An der Grenzfläche zwischen Porenraum und Struktur wird eine homogene Neumann-Randbedingung definiert, die keinen Fluss senkrecht zur Oberfläche zulässt (vgl. Abbildung 4.7a)). Durch Anwendung des Ohm'schen Gesetzes auf den Strom I , der sich aus $\nabla\Phi$ ergibt, kann der effektive Widerstand R und somit die effektive Leitfähigkeit σ_{eff} mit

$$\sigma_{\text{eff}} = \frac{I}{\nabla\Phi} \frac{L}{A} \quad (4.19)$$

bestimmt werden. Dabei beschreibt L die komplette Länge des zu untersuchenden Gebietes und A die dazugehörige Querschnittsfläche. Unter Anwendung der

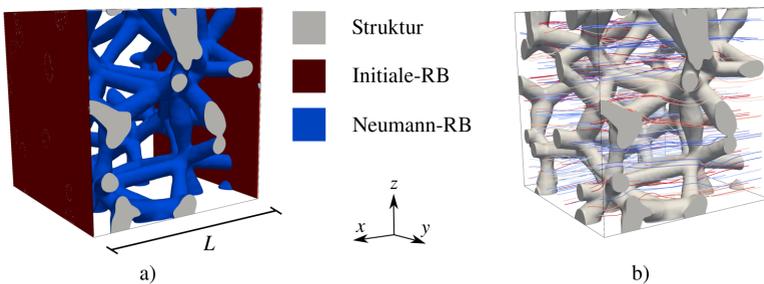


Abbildung 4.7: In a) ist das Simulationsschichten zur Berechnung der Tortuosität in x-Richtung abgebildet, wobei die Randbedingungen (RB) verdeutlicht werden. Die für Gleichung 4.19 relevante Querschnittsfläche A entspricht dabei der roten Fläche. In b) werden einzelne Transportwege zur Visualisierung der Tortuosität in die x-Richtung abgebildet.

bekannten Porosität ε und der Gleichung 2.6 lässt sich die Tortuosität wie folgt berechnen [54]

$$\tau = \varepsilon \frac{\sigma_P}{\sigma_{\text{eff}}}. \quad (4.20)$$

Durch Variation der initialen Randbedingung kann auf diese Weise für alle drei Raumrichtungen eine Tortuosität bestimmt werden. Die Berechnungen werden mit der Simulationsumgebung PACE3D durchgeführt. Eine Validierung des implementierten Algorithmus ist in [3] zu finden.

4.1.6 Permeabilität

In diesem Abschnitt werden die Schritte zur Berechnung der Permeabilität in porösen Strukturen erläutert. In dieser Arbeit werden zwei verschiedene Ansätze verwendet. Der erste basiert auf der Lösung der Stokes-Gleichungen in einer voxelbasierten binären Struktur mithilfe der Simulationssoftware PACE3D. Für den zweiten Ansatz wird die Permeabilität durch das Lösen der Hagen-Poiseuille-Gleichung in einem Porennetzwerkmodell ermittelt, was mit der Open-Source-Software *OpenPNM-2.5.1* [55] umgesetzt wird.

Berechnung in voxelbasierten binären Struktur

Die für diese Arbeit relevanten Strömungen in porösen Membranen sind gekennzeichnet durch eine geringe Strömungsgeschwindigkeit, eine hohe Viskosität des Fluids und eine kleine charakteristische Größe der Geometrie (d.h. kleine Reynolds-Zahl $Re \ll 1$). Infolgedessen können die Trägheitsterme in den Navier-Stokes-Gleichungen vernachlässigt werden. Wenn das Fluid zusätzlich als inkompressibel angenommen wird, resultieren daraus die Stokes-Gleichungen, welche unter Vernachlässigung der Gravitation die Form

$$\mu \nabla^2 \mathbf{u} - \nabla p = 0 \quad (4.21)$$

aufweisen [12, 56], mit der Kontinuitätsgleichung aus Gleichung 2.13

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0. \quad (4.22)$$

Die dynamische Viskosität des Fluids wird durch μ beschrieben, während der Geschwindigkeitsvektor als \mathbf{u} dargestellt wird. Um eine Durchströmung zu ermöglichen und somit den Geschwindigkeitsvektor numerisch zu berechnen, wird an zwei gegenüberliegenden Seiten des Simulationsgebiets der Druckgradient ∇p in eine der Raumrichtungen festgelegt. An der Kontaktfläche zwischen Membran und Flüssigkeit wird zusätzlich eine Haftbedingung (no-slip) angewendet, während die verbleibenden vier Seiten des Simulationsbereichs mit einer Randbedingung ohne Reibung (slip) definiert werden. Somit kann orthogonal zur Strömungsrichtung kein Stofftransport stattfinden, weshalb die Geschwindigkeiten in diese Richtungen vernachlässigbar klein sind.

Durch das numerische Lösen der Stokes-Gleichungen im Porenraum wird das Geschwindigkeits- und Druckfeld ermittelt. Damit wird anschließend die Permeabilität mittels des Gesetzes von Darcy aus Gleichung 2.7 berechnet. Durch die Variation der initialen Druckrandbedingung können die Diagonalen K_{xx} , K_{yy} und K_{zz} des Permeabilitätstensors \mathbf{K} bestimmt werden. Die Berechnungen werden mit der Simulationsumgebung PACE3D durchgeführt, wobei eine Validierung des implementierten Algorithmus in [3] und [57] zu finden ist.

Berechnung in einem Porennetzwerkmodell

Der zweite Ansatz zur Berechnung der Permeabilität K , basiert auf der Berechnung der einphasigen Strömung in einem Porennetzwerkmodell. Dazu wird der Gesamtvolumenstrom \dot{V}_{ges} einer Flüssigkeit in Strömungsrichtung berechnet, was in dieser Arbeit mit dem in *OpenPNM* implementierten *Hagen-Poiseuille Model* realisiert wird. Darin wird das PNM in Zellen aufgeteilt und für jede Zelle eine hydraulische Leitfähigkeit g_{i-j} berechnet. Eine Zelle besteht aus einem Kanal beziehungsweise der Porenengstelle K und den zwei angrenzenden Teilporen i und j , welche als Kegelstümpfe angenommen werden (siehe

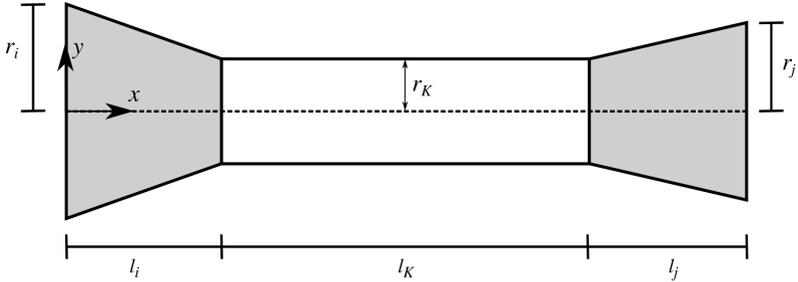


Abbildung 4.8: Zur Berechnung der Permeabilität in einem PNM, wird dieses in einzelne Zellen unterteilt. Die Abbildung zeigt eine solche Zelle, bestehend aus den zwei Teilporen i und j sowie dem verbindenden Kanal K . Dabei werden die Teilporen als Kegelstümpfe und der Kanal als Zylinder angenommen.

Abbildung 4.8). Die hydraulische Leitfähigkeit beschreibt den Zusammenhang zwischen der Druckdifferenz $P_j - P_i$ und dem Volumenstrom \dot{V}_{i-j} und ist nach Hagen-Poiseuille wie folgt definiert [58]

$$\dot{V}_{i-j} = g_{i-j} \frac{P_j - P_i}{\mu l_{i-j}}. \quad (4.23)$$

Aufgrund der Kontinuitätsgleichung 2.13 gilt im stationären Zustand, dass sich die Summe aller Ströme in einer Pore gegenseitig aufheben, wodurch

$$0 = \sum_j^n g_{i-j} \frac{P_j - P_i}{\mu l_{i-j}} \quad (4.24)$$

gilt. Hierbei beschreibt n die Anzahl aller mit der Pore i verbundenen Poren. Die hydraulischen Leitfähigkeiten g_{i-j} ergeben sich aus der Reihenschaltung der Teilporen i und j sowie des Kanals K

$$\frac{g_{i-j}}{l_{i-j}} = \left(\frac{l_i}{g_i} + \frac{l_K}{g_K} + \frac{l_j}{g_j} \right)^{-1}, \quad (4.25)$$

wobei die Leitfähigkeiten g_i , g_K und g_j maßgeblich durch die jeweiligen Radien und Längen der Teilabschnitte beeinflusst werden [58]. Durch die Festlegung

einer Druckrandbedingung an den Gebietsrändern lässt sich das Gleichungssystem 4.24 lösen, wodurch ein Gesamtvolumenstrom \dot{V}_{ges} abgeleitet und mithilfe des Darcy Gesetzes aus Gleichung 2.7 die Permeabilität K in Strömungsrichtung berechnet werden kann. Durch Änderung der Druckrandbedingung Δp , kann der Permeabilitätstensor \mathbf{K} berechnet werden.

4.2 Experimentelle Charakterisierung

Die experimentellen Untersuchungen der porösen Membranen wurden in Kooperationen mit der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* in Göttingen durchgeführt. Der Versuchsaufbau zur Kapillarflussporometrie sowie zur Messung der Wickingzeit sind validierte Messverfahren und basieren auf den Veröffentlichungen [12] und [3]. Die experimentelle Methode zur Messung der Porosität basiert auf der Veröffentlichung von Ley et al. [12], wobei für die vorliegende Arbeit im Vergleich zu [12] nicht das Nass- und Trockengewicht, sondern lediglich das Trockengewicht der CN-Membran gemessen wird.

4.2.1 Porositätsbestimmung durch die Wiegemethode

Um die Porosität experimentell zu bestimmen werden insgesamt fünf Membranproben mit einer rechteckigen Abmessungen von $41\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ ausgestanzt. Anschließend werden alle fünf Proben in eine auf $85\text{ }^\circ\text{C}$ vorgeheizte Trockenwaage vom Typ MA100 der Firma *Sartorius* platziert. Nach 10 min wird das gesamte Trockengewicht m_t gewogen. Mit der ermittelten Dichte von Cellulosenitrat $\rho_{\text{CN}} = 1,84\text{ g/cm}^3$ und dem nach der Messung der Membrandicke d_t bekannten Volumen V_t , kann wie folgt die Porosität ε berechnet werden

$$\varepsilon = 1 - \frac{m_t}{\rho_{\text{CN}} V_t}. \quad (4.26)$$

Bei der Analyse von Membranen, die mit einer sogenannten Folienverstärkung hergestellt wurden, erfolgt eine Anpassung der Messwerte in zweierlei Hinsicht:

Zum einen wird von der gemessenen Gesamtdicke d_t die Dicke der Folienverstärkung von $100\ \mu\text{m}$ subtrahiert. Zum anderen wird vom ermittelten Gesamttrockengewicht m_t das Gewicht der Folienverstärkung, welches $0,287\ \text{g}$ beträgt, abgezogen.

4.2.2 Wickingexperiment

Wickingexperimente werden häufig zur Qualitätskontrolle während des industriellen Produktionsprozesses verwendet und um die Membranen in verschiedene Kategorien mit unterschiedlichen Kapillargeschwindigkeiten zu unterteilen. Für die in dieser Arbeit gezeigten Wickingexperimente wurden die Untersuchungen bei der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* mit einem standardisierten Steigzeitmessgerät durchgeführt, wobei die Membranproben mit den standardisierten Abmessungen von $25\ \text{mm} \times 75\ \text{mm}$ in eine Aufhängungsvorrichtung eingespannt werden und mit ihrer kürzeren Kante in ein Reservoir der Testflüssigkeit eingetaucht werden. Sobald die Proben in die Testflüssigkeit tauchen, werden diese aufgrund der herrschenden Kapillarkräfte benetzt. Während des Benetzungsprozesses wird die Höhe h der Flüssigkeitsfront mithilfe einer Kamera detektiert und über die Zeit t aufgezeichnet, wodurch sich die charakteristische Wickingkurve ergibt. Schematisch wird dieses Vorgehen in Abbildung 4.9 dargestellt.

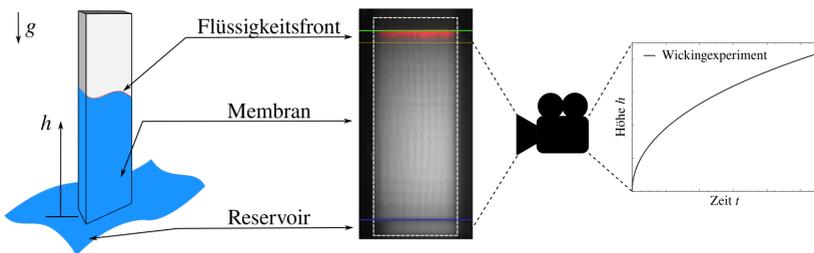


Abbildung 4.9: Im linken Bild wird der Benetzungsprozess einer porösen Membran während eines Wickingexperiment schematisch dargestellt. Die Aufnahme in der Mitte zeigt eine Momentaufnahme zur Erfassung der Wickinghöhe h zum Zeitpunkt t , woraus sich der rechts dargestellte Wickingverlauf ergibt.

4.2.3 Kapillarflussporometrie

Die Kapillarflussporometrie (KFP) ist eine experimentelle Methode zur Charakterisierung der Porengröße in porösen Materialien, insbesondere in Polymermembranen. Sie basiert auf der Flüssigkeits-Extrusionstechnik, bei der eine vollständig benetzte Membran durch eine ansteigende Gasdruckdifferenz freigeblasen wird. Dabei wird die zunehmende Flussrate des Gases detektiert. Die resultierende Messkurve, die die Flussrate in Abhängigkeit von der Gasdruckdifferenz darstellt, wird als Nasskurve bezeichnet [59]. Als Gas wird Stickstoff verwendet, wobei die Druckerhöhung mit der Druckscanmethode [60] realisiert wird. Der sich daraus resultierende Druck, der für die Entleerung einer Pore mit dem Durchmesser d_{KFP} benötigt wird, kann anschließend mithilfe der Young-Laplace-Gleichung

$$\Delta p = \frac{4\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)a}{d_{\text{KFP}}} \quad (4.27)$$

verknüpft [59] werden. Dabei beschreibt γ_{FG} die Oberflächenspannung und θ den Kontaktwinkel des zu benetzenden Fluids. Der Korrekturfaktor a wird bei nicht kugelförmigen Porenformen eingesetzt, wobei basierend auf der Fachliteratur für offenporige Membranstrukturen ein Wert von 0,715 verwendet wird [3].

Zur Detektion einer mittleren Porengröße d_{MFP} (MFP steht hierbei für mean flow pore size), wird zusätzlich zur Nasskurve eine Trockenkurve ermittelt, wobei die Durchflussmessung mit einer trockenen, nicht benetzten Membran durchgeführt wird. Durch die Halbierung aller Durchflusswerte entlang der Trockenkurve, ergibt sich die sogenannte halbierte Trockenkurve. Die mittlere Porengröße d_{MFP} ergibt sich aus dem Schnittpunkt der halbierten Trockenkurve und der Nasskurve. Anhand der Nasskurve kann die maximale Porengröße $d_{\text{MFP}}^{\text{max}}$ ermittelt werden, welche sich aus dem Druck ergibt, bei dem erstmalig eine Flussrate detektiert wird. Die kleinste Porengröße $d_{\text{MFP}}^{\text{min}}$ ergibt sich aus dem Zusammentreffen der

Nass- und Trockenkurve, wobei an dieser Stelle die benetzte Membran vollkommen freigeblasen wurde. Wie bereits in [3] erwähnt, sei an dieser Stelle angemerkt, dass der mit der KFP detektierte Druck sich auf den kleinsten Durchmesser entlang einer Pore bezieht, wodurch die KFP zu einer Unterschätzung der Porengröße tendiert. In Abbildung 4.10 wird qualitativ der Verlauf der einzelnen Messkurven einer KFP dargestellt.

Die KFP-Messungen in der vorliegenden Arbeit wurden mit dem Messgerät *Porolux500* der Firma *Porometer* durchgeführt. Als Benetzungsflüssigkeit wird das unter dem Handelsnamen *Porefil®* bekannte newtonische Fluid mit den in Tabelle 6.1 aufgeführten Eigenschaften verwendet. Dieses Fluid hat den Vorteil, dass mit einem Kontaktwinkel von $\theta = 0^\circ$ kontrollierte Benetzungsbedingungen vorliegen.

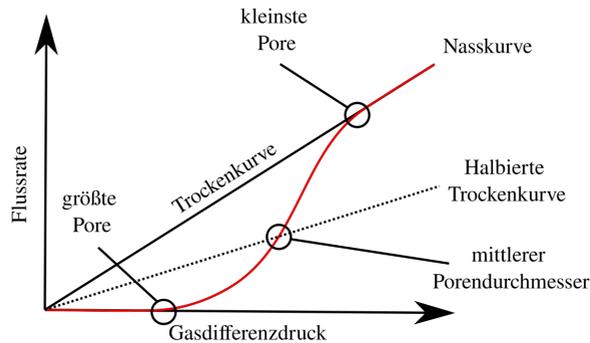


Abbildung 4.10: Qualitative Darstellung der detektierten Messkurven während einer Kapillarflussporometrie.

5 Porenetzwerkmodellierung zur Strömungsanalyse

Die Simulation von Strömungsprozessen in porösen Mikrostrukturen stellt aufgrund ihrer komplexen Morphologie und Topologie eine besondere Herausforderung dar und ist mit einem hohen Rechenaufwand verbunden. Insbesondere Simulationen auf einem detailliert aufgelösten Gitter, die auf den Navier-Stokes-Gleichungen basieren [12, 61], beanspruchen signifikante zeitliche und rechnerische Ressourcen. Trotz der Zuverlässigkeit dieser Methoden sind sie für die schnelle Analyse von Mikrostrukturen, wie sie beispielsweise für die Qualitätskontrolle während des Fertigungsprozesses benötigt wird, oder für die Betrachtung umfangreicherer Simulationsstudien nicht optimal geeignet. Um die Entwicklung poröser Materialien effizienter zu gestalten und Analysen von porösen Mikrostrukturen mit geringerem zeitlichen und rechnerischen Aufwand durchführen zu können, ist eine Vereinfachung der Mikrostrukturen unerlässlich. Dabei ist es entscheidend, dass die abstrahierten Modelle die wesentlichen Eigenschaften der Originalstruktur beibehalten, um genaue Simulationsergebnisse zu gewährleisten. Eine solche Darstellungsform bieten unter anderem graphenbasierte Porenetzwerkmodelle (PNMs). Die Durchführung von Strömungssimulationen, die auf einer PNM-Modellierung basieren, erfordern zunächst die Übertragung der Mikrostruktur von einem digitalen Bild in ein PNM. Dieser Überführungsprozess erweist sich speziell bei hochporösen Mikrostrukturen als herausfordernd, da die Poren oftmals fließend ineinander übergehen. Dies erschwert die klare Zuweisung der einzelnen Voxel im Bild zu spezifischen Poren oder die eindeutige Bestimmung der Grenzen zwischen verschiedenen Poren. Für die Segmentierung des Porenraums existieren zwar diverse Methoden und Algorithmen,

diese fanden jedoch bislang hauptsächlich in der Erdölindustrie Anwendung, wo die untersuchten porösen Materialien in der Regel durch niedrigere Porositäten von unter 40% [62] gekennzeichnet sind. Folglich sind diese Methoden primär für Strukturen mit geringer Porosität konzipiert. Im vorliegenden Kapitel wird eine Porennetzwerkmodellierung vorgestellt, welche die Extraktion eines validen Porennetzwerkmodells für hochporöse offenporige Strukturen ermöglicht.

5.1 Stand der Forschung

Die Entwicklung von Porennetzwerkmodellen zur Abstraktion poröser Mikrostrukturen findet ihren Ursprung in der Arbeit von Fatt et al. [63] aus den 1950er Jahren. Obwohl das Modell von Fatt et al. bereits eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Strömungsanalysen aufwies, beschränkte sich seine Vorhersagegenauigkeit hauptsächlich auf einfache geometrische Anordnungen wie dicht gepackte Kugeln mit unterschiedlichen Durchmessern. Im weiteren Verlauf der Jahre ließ das Interesse an PNMs in den frühen 1990er Jahren vorübergehend nach, bedingt durch den Rückgang an Forschungsförderungen und der Erkenntnis, dass zur umfassenden Prognose von Strömungs- und Transportphänomenen komplexere Modelle erforderlich sind als die damals üblichen. In letzter Zeit hat das Interesse an PNMs wieder zugenommen, motiviert durch signifikante Fortschritte sowohl in der Abstraktion des Porenraums und in den Simulationstechniken. Diese Entwicklungen haben frühere Einschränkungen überwunden und die Porennetzwerkmodellierung zu einer vielseitigen Methode ausgebaut, welche die Untersuchung einer breiten Palette von Strömungsphänomenen in porösen Medien ermöglicht [64–66].

Dabei wurden eine Vielzahl von Algorithmen zur Extraktion eines PNM entwickelt, wobei Rabbani et al. [67] eine umfangreiche Zusammenfassung dieser Methoden liefert. Ein spezifischer Ansatz ist der *Maximal Ball Algorithmus* (MBA), der ursprünglich von Silin et al. [68] eingeführt und durch die Arbeiten von Al-Kharusi und Blunt [69] sowie Dong und Blunt [70] weiterentwickelt und verfeinert wurde. Dieses Verfahren vergrößert in jedem Voxel des Porenraums eine

Kugel, bis sie die Strukturoberfläche berührt. Diese Kugeln, bekannt als *Maximal Balls* (MBs), werden basierend auf ihrer Größe sortiert und gefiltert, was zur Bildung von Clustern und Ketten führt. Diese repräsentieren den Porenraum und legen die Grundlage für die Identifizierung von Poren und Porenengstellen. Ein alternativer Ansatz zur Erstellung von Porennetzwerkmodellen ist die Verwendung des medialen Skeletts des Porenraums innerhalb einer porösen Mikrostruktur. Für jedes Voxel innerhalb dieses Skeletts wird die minimale Euklidische Distanz zur Strukturoberfläche berechnet. Mit dieser Technik haben Joekar Niasar et al. [71] erfolgreiche Benetzungssimulationen in porösen Strukturen durchgeführt, die zuverlässige Resultate erzielten. In ihrer Arbeit [72] präsentieren Liang et al. weiterhin eine Methode, die das Skelett zur Unterteilung des Porenraums in einzelne Poren verwendet. Diese Segmentierungsstrategie nutzten Liang et al. in einer weiteren Untersuchung [73], um die Permeabilität und elektrische Leitfähigkeit verschiedener poröser Mikrostrukturen zu analysieren. Aufbauend auf den Forschungen von Sheppard et al. [74] und Rabbani et al. [67] entwickelten Gostick et al. [46] einen optimierteren Algorithmus, der den Porenraum mittels einer markerbasierten Wasserscheidentransformation in einzelne Porensegmente unterteilt. Die detaillierte Analyse dieser Segmente ermöglicht die Extraktion eines umfassenden PNM, wobei die ermittelten Segmente als Poren und deren Kontaktflächen als Porenengstellen definiert werden. Dieser Ansatz zeigt auch für hochporöse Strukturen vielversprechende Resultate. In dieser Arbeit wurde ein Extraktionsalgorithmus entwickelt, der sich auf die zuletzt beschriebene Methode stützt und vielversprechende Ergebnisse für hochporöse, offenporige Membranstrukturen zeigt.

5.2 Extraktion eines Porennetzwerkmodells

In dieser Arbeit wurde ein Extraktionsalgorithmus entwickelt, der auf der Methode von Jeff Gostick [46] basiert. Dieser Algorithmus wurde in die Simulationssoftware PACE3D implementiert. Die Extraktion erfolgt in zwei Phasen: i)

zuerst wird der Porenraum mithilfe einer markerbasierten Wasserscheidentransformation in einzelne Segmente unterteilt. ii) danach wird auf Grundlage dieser Segmentierung ein Graph erstellt, der aus Poren und Kanälen mit definierten Eigenschaften besteht. Im folgenden Kapitel wird der Extraktionsalgorithmus näher erläutert, um anschließend poröse, offene Strukturen damit zu charakterisieren.

5.2.1 Segmentierung des Porenraums

Die Segmentierung des Porenraums zur Ableitung eines PNMs erfolgt durch die in Abschnitt 3.2.2 beschriebene und validierte markerbasierte Wasserscheidentransformation. Die Schritte I-IV zur Identifizierung der Marker werden exakt wie in Abschnitt 3.2.2 erläutert ausgeführt. Im Segmentierungsschritt V wird zusätzlich zur Unterteilung des Porenraums in einzelne Segmente eine ein Voxel dicke Kontaktfläche zwischen den Segmenten detektiert, welche im Folgenden als Wasserscheide bezeichnet wird. Dies ist in Abbildung 5.1 dargestellt. In 5.1b) ist die Unterteilung des Porenraums aus Abbildung 5.1a) zu sehen, während Abbildung 5.1c) die entsprechenden Wasserscheiden zwischen den benachbarten

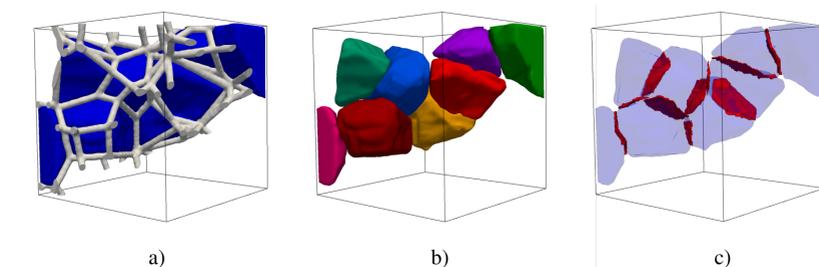


Abbildung 5.1: Abbildung a) zeigt einen Teilausschnitt einer porösen 3D-Struktur. Der Porenraum ist in blau und die Struktur in grau dargestellt. In b) ist die entsprechende Segmentierung des Porenraums dargestellt, die auf der markerbasierten Wasserscheidentransformation beruht. In c) sind die Kontaktflächen beziehungsweise Wasserscheiden zwischen den einzelnen Segmenten rot hervorgehoben.

Segmenten hervorhebt. Somit ist am Ende der ersten Phase des Extraktionsalgorithmus jedem Voxel im Porenraum entweder eine Pore oder eine Wasserscheide zugewiesen.

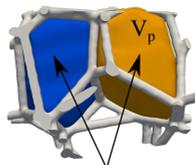
5.2.2 Extraktion der Porennetzwerkeigenschaften

In der zweiten Phase erfolgt die eigentliche Extraktion des Porennetzwerkmodells, basierend auf der zuvor durchgeführten Segmentierung. Dabei wird angenommen, dass jedes Segment einer Pore entspricht und die Wasserscheide zwischen zwei Segmenten als Kanal zwischen diesen Poren betrachtet wird [46]. Mit dieser Annahme werden die Eigenschaften aller Poren und Kanäle extrahiert und in das sogenannte Statioil Format exportiert. Dieses Format umfasst vier zeilenorientierte Dateien, die sämtliche relevanten Eigenschaften der Poren und Kanäle enthalten, wie in [75] beschrieben.

Ermittlung der Poreneigenschaften

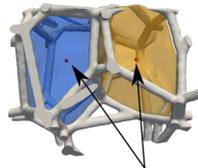
Zunächst wird jeder Pore ein klar identifizierbarer Index zugewiesen, wodurch jeder Voxel, der sich nicht im Strukturraum oder auf der Wasserscheide befindet, eindeutig zugeordnet werden kann. Anschließend werden für jede Pore die folgenden Eigenschaften ermittelt, wobei jede Eigenschaft anhand zweier benachbarten Poren veranschaulicht wird.

- Das Volumen V_p einer Pore kann durch die Anzahl der Voxel, die ihr zugeordnet sind, ermittelt werden. Hierzu wird die Anzahl der Porenvoxel mit dem Volumen eines einzelnen Voxels multipliziert.



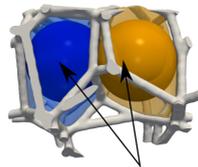
Porensegmente

- Der Porenanker a_p beschreibt die Koordinaten der Pore und wird als der Voxel innerhalb des Porensegments festgelegt, bei dem der Wert des zuvor berechneten Euklidischen Distanzfeldes (EDF) (vgl. Abschnitt 3.2.2) am größten ist.



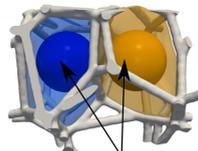
Porenanker a_p

- Der Porenradius r_p wird als der maximale Wert des EDF innerhalb eines Porensegments definiert. Dieser Wert entspricht dem Radius der größtmöglichen Kugel, die mit dem Porenanker als Ursprung in das Porensegment passt, ohne die Struktur zu berühren.



Porenradius r_p

- Der eingebettete Porenradius r_e entspricht dem Radius der größtmöglichen Kugel, die in das Porensegment passt ohne die Struktur oder Wasserscheide zu berühren. Zur Bestimmung dieses Radius wird in jeder Pore ein lokales Euklidisches Distanzfeld erzeugt, aus dem der maximale Wert abgeleitet wird.

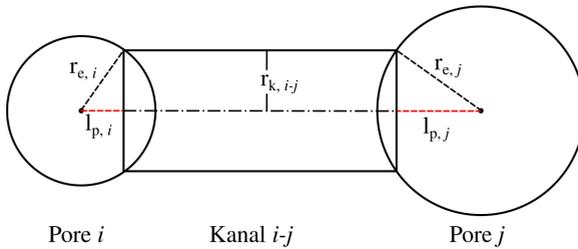


eingebetteter
Porenradius r_e

- Die Porenlänge l_p wird für jede Teilpore innerhalb einer Zelle berechnet. Hierbei repräsentiert eine Zelle, wie in Abbildung 4.8 dargestellt, die zwei Teilporen i und j und den verbindenden Kanal k . Die Berechnung der Porenlänge $l_{p,i}$ für die Pore i erfolgt mithilfe des eingebetteten Porenradius $r_{e,i}$ und dem Kanalradius $r_{k,i-j}$ nach dem Satz des Pythagoras über

$$l_{p,i} = \sqrt{r_{e,i}^2 - r_{k,i-j}^2}. \quad (5.1)$$

Dieser Zusammenhang wird in der folgenden Skizze veranschaulicht. Äquivalent dazu wird die Porenlänge $l_{p,j}$ berechnet.



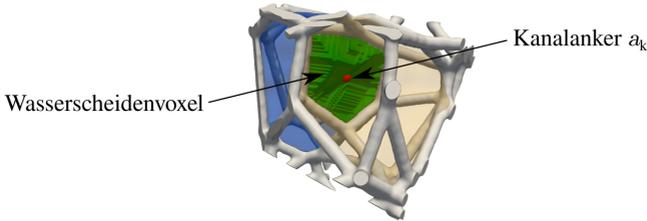
- Für jede Pore wird überprüft, ob sie direkten Kontakt zu den Gebietsrändern hat. Ist dies der Fall, wird sie als Randpore markiert.

Ermittlung der Kanaleigenschaften

Die Bestimmung der Nachbarschaftsbeziehungen zwischen den Poren erfolgt durch die Analyse der Wasserscheidenvoxel. In unmittelbarer Nähe dieser wird nach anderen Voxeln gesucht, die zu verschiedenen Porensegmenten gehören. Die Indizes der Poren in diesen lokalisierten Bereichen werden gespeichert, um die Nachbarschaftsbeziehung dieser zu ermitteln. Zusätzlich werden sämtliche Wasserscheidenvoxel zwischen zwei Poren mit einem spezifischen Kanalindex markiert. Dadurch lässt sich der Porenraum unter Berücksichtigung sämtlicher Nachbarschaftsbeziehungen als Graph $G = (P, T)$ darstellen, wobei P die Gesamtheit der Poren und T die Gesamtheit aller Kanäle umfasst.

Zur Ermittlung der Kanaleigenschaften werden alle zu einem Kanal k gehörenden Wasserscheidenvoxel w analysiert, um folgende Merkmale für jeden Kanal zu bestimmen:

- Der Kanalanker a_k ist der Voxel, der den größten Distanzwert im globalen Distanzfeld der Kontaktflächenvoxel hat, was in der folgenden Abbildung anhand zweier benachbarter Poren verdeutlicht wird.



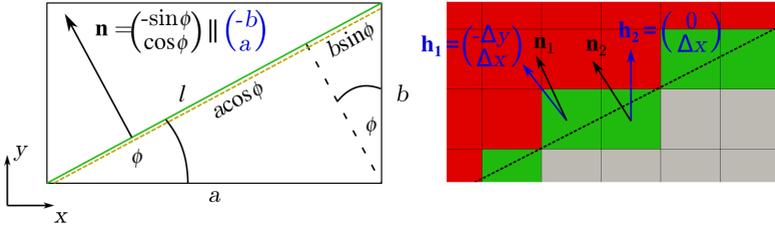
- Zur Berechnung der in der vorangegangenen Abbildung grün dargestellten Kontaktfläche A_k des Kanals k wird in dieser Arbeit der folgende numerische Ansatz verwendet: Unter Verwendung des Einheitsnormalenvektors \mathbf{n} und eines Hilfsvektors \mathbf{h} , der die Nachbarschaftsbeziehungen widerspiegelt, wird eine Zuordnung des Flächeninhaltes (3D) beziehungsweise der Länge (2D) entwickelt. Für den zweidimensionalen Fall, wie in der nachfolgenden Abbildung links dargestellt, ergibt sich folgender Zusammenhang

$$l = a \cos \phi + b \sin \phi = \mathbf{n} \cdot \begin{pmatrix} -b \\ a \end{pmatrix} = \mathbf{n} \cdot \mathbf{h}. \quad (5.2)$$

Äquivalent dazu kann im dreidimensionalen Fall durch Berechnung des Einheitsnormalenvektors \mathbf{n} und des Hilfsvektors \mathbf{h} für jeden der w Wasserscheidenvoxel die Kontaktfläche A_k berechnet werden

$$A_k = \sum_{i=0}^w \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{h}_i. \quad (5.3)$$

Im rechten Teil der nachfolgenden Abbildung wird die Übertragung der Beziehung aus Gleichung 5.2 auf ein diskretisiertes Gebiet für den zweidimensionalen Fall dargestellt, wobei die Oberfläche zwischen den grün und rot dargestellten Zellen berechnet wird.

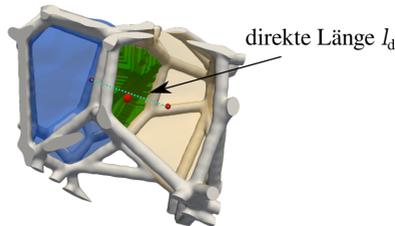


- Der Kanalradius r_k wird mithilfe der Kontaktfläche A_k und dem äquivalenten Kreis nach

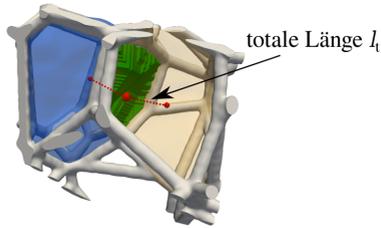
$$r_k = \sqrt{\frac{A_k}{\pi}} \quad (5.4)$$

berechnet

- Die direkte Länge l_d eines Kanals gibt die Euklidische Distanz zwischen den Porenankern der beiden verbundenen Poren an.



- Die totale Länge l_t eines Kanals entspricht der Summe der Euklidischen Distanzen zwischen den Ankern der Poren, die durch den Kanal miteinander verbunden sind, sowie dem Kanalanker a_k .



- Die effektive Kanallänge l_e wird mithilfe der totalen Länge l_t und den Porenlängen l_p der verbindenden Poren i und j berechnet

$$l_e = l_t - (l_{p,i} + l_{p,j}). \quad (5.5)$$

- Das Volumen des Kanals V_k berechnet sich durch das Produkt der effektiven Kanallänge l_e und der Kontaktfläche A_k

$$V_k = A_k l_e. \quad (5.6)$$

5.2.3 Validierung der Extraktion

Die Validierung der Segmentierung des Porenraums wird in Abschnitt 3.2.2 vorgestellt. An dieser Stelle wird die Extraktion der Poren- und Kanaleigenschaften anhand einiger vereinfachter Strukturen mit bekannten Eigenschaften durchgeführt. Dazu wird eine komplexe poröse Struktur erzeugt, die aus Kugeln und Zylindern mit variierenden Radien besteht. Dies ist in Abbildung 5.2a) veranschaulicht, wobei das blaue Volumen den Porenraum und das graue die Struktur repräsentiert. Insgesamt setzt sich die Struktur aus 343 Kugeln zusammen. Von diesen haben die 218 Randkugeln einen festen Porenradius von 15 Zellen, während die übrigen Kugeln einen zufälligen Porenradius zwischen 13 und 45 Zellen besitzen. Die Zylinder variieren im Radius zwischen fünf und zwölf Zellen. Der Abstand zwischen zwei benachbarten Kugeln beträgt in Bezug auf den Mittelpunkt in alle Raumrichtungen 100 Zellen.

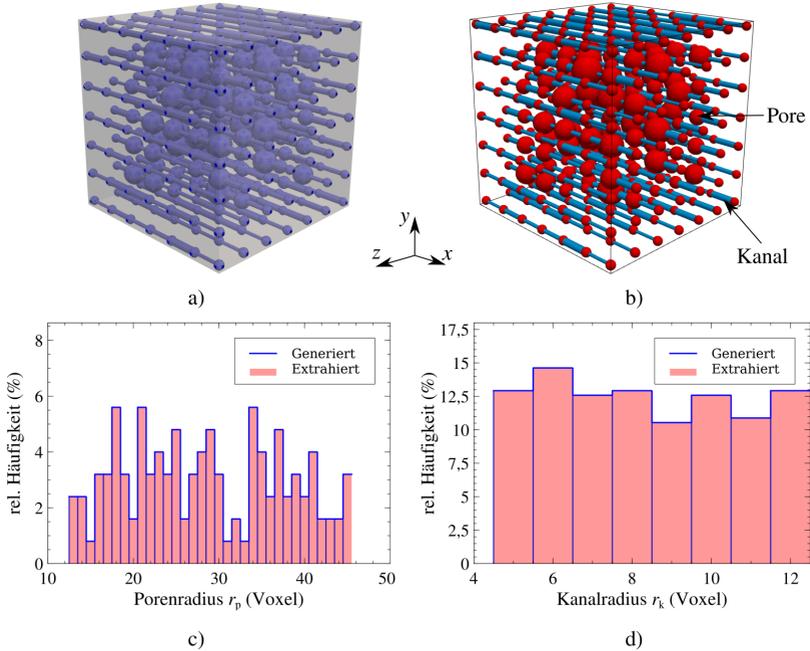


Abbildung 5.2: In a) ist eine generierte poröse Struktur aus Kugeln und Zylindern abgebildet. Dabei zeigt das blaue Volumen den Porenraum und das graue Volumen die Struktur. In b) wird das daraus abgeleitete Porennetzwerkmodell dargestellt, wobei die roten Kugeln die Poren und die blauen Zylinder die Kanäle repräsentieren. In c) und d) werden die Verteilungen der generierten und extrahierten Porenradien sowie Kanalradien der Struktur aus a) gegenübergestellt, wobei die Verteilungen exakt übereinstimmen.

Abbildung 5.2b) zeigt das extrahierte Porennetzwerkmodell, in dem die Poren rot und die Kanäle blau dargestellt werden. Hierbei wird ersichtlich, dass die Anzahl der extrahierten Poren mit der Gesamtzahl aller Kugeln übereinstimmt. Dies bestätigt, wie bereits in Abbildung 3.7 gezeigt wurde, eine korrekte Segmentierung des Porenraums. Des Weiteren werden alle 218 Randporen erfolgreich detektiert und die direkte Kanallänge l_d beträgt für jeden Kanal exakt 100 Zellen, was dem vorgegebenen Wert entspricht. Die Verteilung der generierten und extrahierten Porenradien r_p (ausgenommen aller Randporen) wird in Abbildung 5.2c) als Histogramm dargestellt. Es zeigt sich eine exakte Übereinstimmung zwischen

den generierten und extrahierten Daten. Darüber hinaus wurde der eingebettete Porenradius r_e für jede Pore detektiert. Da dieser für die vorliegende Struktur stets mit dem Porenradius r_p übereinstimmt, wurde aus Gründen der Übersichtlichkeit auf die Darstellung der Verteilung des eingebetteten Porenradius in Abbildung 5.2c) verzichtet. An dieser Stelle sei erwähnt, dass die Randporen bei der Analyse der Verteilung der Porenradien unberücksichtigt bleiben. Die Verteilung der generierten und extrahierten Kanalradien r_k wird in Abbildung 5.2d) als Histogramm präsentiert. Auch hier zeigt sich eine präzise Übereinstimmung zwischen den generierten und extrahierten Daten, was die erfolgreiche Validierung der Extraktion der Porenetzwerkmodelleigenschaften abschließend bestätigt. Um weiterhin den Einfluss der Diskretisierung auf die extrahierten Eigenschaften des Porenradius r_p , des Kanalradius r_k und der direkten Kanallänge l_d zu validieren, wird die in Abbildung 5.3a) dargestellte vereinfachte Struktur, bestehend aus Kugeln und Zylindern, mit variierender Bildauflösung generiert. Alle weiteren Parameter ergeben sich anhand dieser Eigenschaften und werden im folgenden nicht gesondert betrachtet. Dabei wird die Berechnung des Kanalradius an einem entlang der x -Richtung ausgerichteten Zylinder sowie an einem

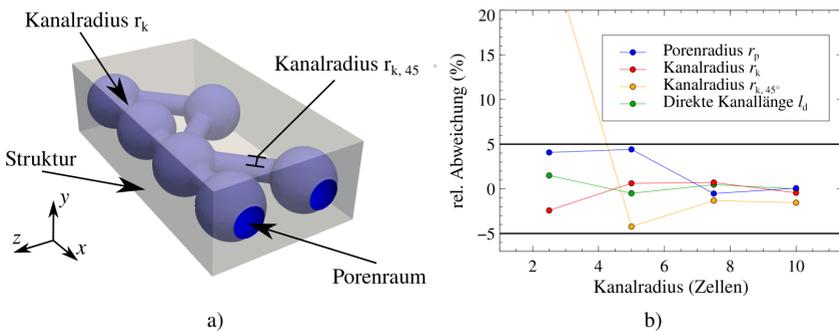


Abbildung 5.3: In a) wird die vereinfachte Struktur bestehend aus Kugeln und Zylindern, zur Validierung der Extraktion dargestellt. Dabei sind drei Zylinder parallel zur x -Achse ausgerichtet und drei Zylinder in der xz -Ebene um 45° gekippt. In b) wird die relative Abweichung der extrahierten Parameter des Porenradius, des Kanalradius und der direkten Kanallänge über dem vorgegebenen Kanalradius aufgetragen. Dabei wird, ausgehend von einem Kanalradius von 2,5 Zellen die Diskretisierung verdoppelt, verdreifacht und vervierfacht.

um 45° gekippten Zylinder validiert. In Abbildung 5.3b) werden die Ergebnisse dieser Untersuchung abgebildet, indem die relative Abweichung des vorgegebenen und extrahierten Werts über dem vorgegebenen Kanalradius der geraden Zylinder aufgezeigt ist. Daraus folgt, dass bereits ab einer Auflösung des Zylinders mit einem Kanalradius von 2,5 Zellen und einem vorgegebenen Porenradius von sechs Zellen, der Porenradius r_p , der Kanalradius r_k des geraden Zylinders sowie die direkte Kanallänge l_d mit einer adäquaten relativen Abweichung von unter fünf Prozent ermittelt werden können. Für den um 45° verkippten Zylinder, welcher im diskretisierten Raum im Vergleich zum geraden Zylinder einen deutlich komplexeren Fall zur Berechnung eines Kanalradius darstellt, wird ab einer Diskretisierung des Zylinderradius mit mindestens fünf Zellen eine relative Abweichung von unter fünf Prozent erreicht. Schlussfolgernd liefert die Untersuchung valide Ergebnisse für die Extraktion der Poren- und Kanaleigenschaften, sofern die Porenengstellen mit einem Radius von mindestens fünf Zellen abgebildet werden.

5.3 Methoden zur Berechnung des Porenradius im Vergleich

Die Bestimmung eines geometrischen Porenradius ist für die Charakterisierung einer porösen Struktur von großer Bedeutung. Aufgrund der Vielfalt an verfügbaren Lösungsansätzen ist eine sorgfältige Auswahl der Methode entscheidend, um für die zu analysierenden Strukturen optimale Ergebnisse zu erzielen. Im nächsten Abschnitt werden daher drei verschiedene Methoden zur Bestimmung eines geometrischen Porenradius in porösen Membranstrukturen angewendet und deren Vor- und Nachteile verglichen. Als erste Methode erfolgt die Berechnung eines geometrischen Porenradius $r_{p, \text{PNM}}$, durch die Extraktion eines PNM (vgl. Kapitel 5.2.2). Als zweite Methode wird die Berechnung eines richtungsabhängigen geometrischen Porenradius $\bar{b}_{x,y,z}$ betrachtet, welche auf dem Verfahren aus Kapitel 4.1.3 basiert. Hierbei erfolgt zunächst die Segmentierung des Porenraums

mittels einer markerbasierten Wasserscheidentransformation in einzelne Porensegmente. Anschließend wird ein gemittelttes Ellipsoid ermittelt, das die Orientierung und Ausbreitung der Segmente widerspiegelt. Als dritte Methode wird ein mittlerer Porenradius r_p basierend auf der Kombination einer Medial-Achse und eines Distanzfeldes des Porenraums berechnet (vgl. Kapitel 4.1.2).

Die Unterschiede zwischen diesen drei Methoden werden in Abbildung 5.4 verdeutlicht. Abbildung 5.4a) zeigt dazu den Ausschnitt einer porösen Struktur, in der ein detektiertes Porensegment zusätzlich in blau hervorgehoben wird. Dieses dient zur Veranschaulichung der Berechnung von $r_{p, \text{PNM}}$ in Abbildung 5.4b) und $\bar{b}_{x,y,z}$ in Abbildung 5.4c). Abbildung 5.4d) illustriert die Kombination der Medial-Achse und des Distanzfeldes innerhalb dieses Porensegments.

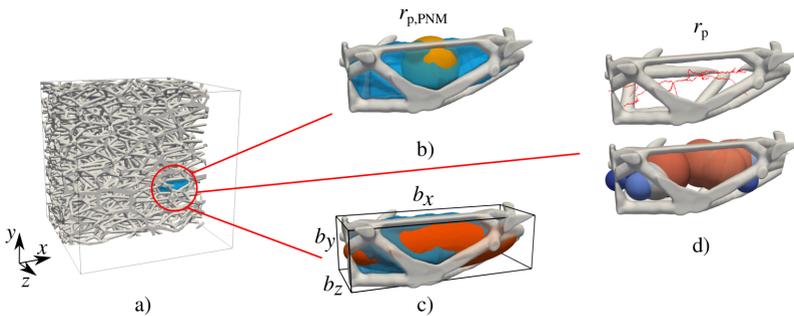


Abbildung 5.4: In a) wird ein Ausschnitt einer generierten Struktur gezeigt, wobei zusätzlich ein detektiertes Porensegment abgebildet wird. In b) wird die Berechnung von $r_{p, \text{PNM}}$ verdeutlicht, welcher die größtmögliche Kugel repräsentiert, die in das Segment passt, ohne die Struktur zu berühren. In c) wird die Berechnung von $b_{x,y,z}$ veranschaulicht, wobei die Ellipsoide, die das Porensegment beschreibt, in orange dargestellt ist. In d) wird sowohl die Medial-Achse als auch das Distanzfeld entlang der Medial-Achse abgebildet.

Der quantitative Vergleich der drei Methoden erfolgt zunächst anhand synthetischer Strukturen, bevor alle drei Methoden auf reale Membranstrukturen angewendet werden.

5.3.1 Anisotrope synthetische Membranstrukturen

Für die Untersuchungen in synthetischen Strukturen wird die Generierung mittels der Voronoizerlegung aus Kapitel 3.2.1 verwendet. Dieser Algorithmus bietet die Möglichkeit, eine definierte strukturelle Anisotropie zu generieren, was für die vorliegende Untersuchung von Bedeutung ist. Zuerst werden transversal isotrope Strukturen analysiert, welche sich durch eine strukturelle Anisotropie in eine Richtung auszeichnen. Danach werden orthotrope Membranstrukturen untersucht, die eine strukturelle Anisotropie in alle drei Raumrichtungen (x , y , z) aufweisen.

Transversal isotrope Membranstrukturen

Zur Analyse werden insgesamt 110 transversal isotrope Membranstrukturen erzeugt, wobei stets eine Gebietsgröße von $104\ \mu\text{m} \times 104\ \mu\text{m} \times 104\ \mu\text{m}$ mit einer räumlichen Auflösung Δx , Δy und Δz von $160\ \text{nm/Voxel}$ gewählt wird. Die verbleibenden Generierungsparameter werden so gewählt, dass die makroskopischen Eigenschaften denen der realen Membranproben ähneln. Für alle Strukturen wird eine Porosität von 85 % und eine anfängliche Anzahl der Voronoigeiete von 825 gewählt. Der mittlere Stegradius wird auf $0,95\ \mu\text{m}$ festgelegt. Zusätzlich wird den Strukturen eine Streckung in x -Richtung aufgeprägt. Die Intensität der eingestellten Anisotropie variiert zwischen 22 unterschiedlichen Graden. Um eine statistische Varianz zu gewährleisten, werden für jeden Anisotropiegrad fünf unterschiedliche Strukturen erzeugt. Diese weisen die gleichen grundlegenden Eigenschaften auf, besitzen jedoch aufgrund einer variierenden Verteilung der initialen Voronoigeiete eine unterschiedliche Morphologie. Abbildung 5.5a) veranschaulicht die Auswirkungen einer strukturellen Anisotropie. Hierbei wird deutlich, dass sich der Porenraum mit zunehmendem Grad der Anisotropie DA in Richtung der x -Achse verformt.

In Abbildung 5.5b) werden die Ergebnisse der drei verschiedenen Methoden zur Bestimmung des geometrischen Porenradius dargestellt. Für jeden Grad der Anisotropie wird der Mittelwert sowie die Standardabweichung des jeweiligen

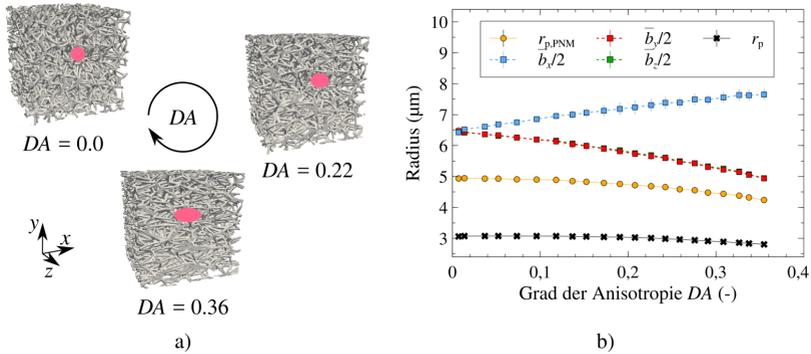


Abbildung 5.5: In a) sind drei Strukturen mit einer Gebietsgröße von $104\mu\text{m} \times 104\mu\text{m} \times 104\mu\text{m}$ dargestellt: eine isotrope Struktur und zwei anisotrope Strukturen, die mit einer strukturellen Ausrichtung entlang der x -Richtung generiert wurden. In b) werden die Ergebnisse der unterschiedlichen Methoden zur Berechnung eines geometrischen Porenradius gezeigt. Für jeden Grad der Anisotropie wird der Mittelwert sowie die Standardabweichung des jeweiligen Radius über die fünf Strukturen gezeigt. Die Übereinstimmung des in grün dargestellten Verlaufs von $\bar{b}_z/2$ mit dem von $\bar{b}_y/2$ führt dazu, dass ersterer verdeckt wird.

Radius über diese fünf Strukturen gezeigt. Die geringen relativen Standardabweichungen von maximal 2,86 % zeigen, dass alle Methoden präzise und zuverlässige Ergebnisse liefern. Der Porenradius $r_{p,PNM}$ verringert sich von $4,94\mu\text{m}$ in isotropen Strukturen zu $4,24$ in den Strukturen mit der größten Anisotropie von $DA = 0,36$. Aufgrund der Charakteristika dieser Methode - es wird die größtmögliche Kugel berücksichtigt, die in das jeweilige Porensegment passt - kann eine strukturelle Anisotropie nicht detektiert werden. Dies kann lediglich das Verfahren aus Kapitel 4.1.3, da hier durch die Berechnung einer gemittelten Ellipsoide eine Ausrichtung des segmentierten Porenraums ermittelt werden kann. Wie zu erwarten zeigt sich, für isotrope Strukturen eine gleichmäßige Ausrichtung in alle Raumrichtungen, während sich der Unterschied der Ausrichtung für anisotrope Strukturen mit steigender Streckung erhöht. Im Vergleich zu $r_{p,PNM}$ sind die Werte stets größer, da für die Berechnung der gemittelten Ellipsoide jeweils das komplette Porensegment berücksichtigt wird, während das Volumen der größtmöglichen Kugel bei $r_{p,PNM}$ im Vergleich zum Porensegment einen kleineren Wert aufweist. Verdeutlicht wird dies in Abbildung 5.4b) und 5.4c).

Der auf der x -Achse in Abbildung 5.5b) aufgetragene Grad der Anisotropie leitet sich aus dieser Methode und der Gleichung 2.3 ab.

Der Porenradius r_p , basierend auf der Kombination der Medial-Achse und des Distanzfeldes, ermittelt im Gegensatz zu den beiden zuvor gezeigten Methoden einen kleineren Porenradius. Dies liegt daran, dass bei dieser Methode nicht nur der maximale Wert des Euklidischen Distanzfeldes (EDF) bei der Betrachtung eines Porensegments berücksichtigt wird, sondern zusätzlich alle EDF-Werte entlang der Medial-Achse einfließen (vgl. Abbildung 5.4d)). Das schließt, ähnlich wie bei $r_{p, \text{PNM}}$, eine Berücksichtigung einer strukturellen Anisotropie aus.

Orthotrope Membranstrukturen

In dieser Studie wird der Unterschied zwischen den verschiedenen Messmethoden zur Bestimmung eines geometrischen Porenradius in orthotropen Membranstrukturen analysiert. Dazu werden für 15 unterschiedliche Grade der Anisotropie je fünf Strukturen generiert, wobei die Strukturen dieselben makroskopischen Eigenschaften wie die in der vorherigen Studie aufweisen. Im Gegensatz zu dieser erfolgt bei der Generierung nicht nur eine Strukturstreckung in x -Richtung, sondern auch in y -Richtung. Die Streckung in x -Richtung wird so variiert, dass sie stets kleiner oder gleich der Dehnung in y -Richtung bleibt. Da somit eine orthotrope Anisotropie vorliegt, genügt zur vollständigen Beschreibung des Grades der Anisotropie DA nicht mehr nur ein Wert. Es werden stattdessen zwei benötigt. Für diese Studie gilt aufgrund der Wahl der Generierungsparameter folgende Beziehung:

$$DA_1 = 1 - \frac{\bar{b}_z}{\bar{b}_y} \quad (5.7)$$

$$DA_2 = 1 - \frac{\bar{b}_x}{\bar{b}_y} \quad (5.8)$$

wobei stets $\bar{b}_z \leq \bar{b}_x \leq \bar{b}_y$ vorliegt.

In Abbildung 5.6a) und b) sind die Ergebnisse der computergestützt ermittelten

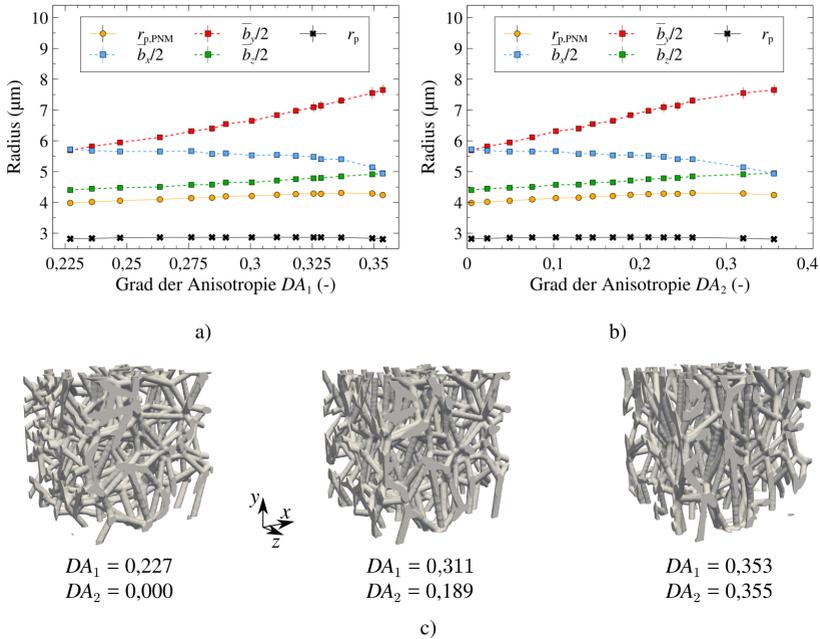


Abbildung 5.6: Abbildung a) zeigt die Ergebnisse verschiedener computergestützter Methoden zur Bestimmung des geometrischen Porenradius in synthetisch erzeugten orthotropen Strukturen. Für jeden Anisotropiegrad DA_1 werden sowohl der Durchschnittswert als auch die Standardabweichung des Radius für die fünf Strukturen dargestellt. Eine analoge Darstellung findet sich in b) für den zweiten Anisotropiegrad DA_2 . In Abbildung c) sind drei Strukturen mit unterschiedlichen Anisotropiegraden exemplarisch dargestellt. Zur besseren Veranschaulichung wird jeweils nur ein Ausschnitt von $48\ \mu\text{m} \times 48\ \mu\text{m} \times 48\ \mu\text{m}$ der gesamten Struktur gezeigt.

Porenradien dargestellt. Abbildung 5.6a) zeigt die Radien in Abhängigkeit von DA_1 und Abbildung 5.6b) in Bezug auf DA_2 . Für jeden Grad der Anisotropie wird der Mittelwert sowie die Standardabweichung des jeweiligen Radius über die fünf Strukturen gezeigt. Die geringen relativen Standardabweichungen von maximal 2,54 % bestätigen erneut, dass alle Methoden präzise und zuverlässige Ergebnisse liefern. Bei der Interpretation der geometrischen Porenradien r_p , $r_{p,PNM}$ und r_p zeigen sich analog zu den transversal isotropen Strukturen, nahezu konstante Werte. Dies steht im Gegensatz zu den deutlich erkennbaren strukturellen

Unterschieden, die Abbildung 5.6c) exemplarisch zeigt. Entsprechend werden die die Grenzen beider Messmethoden unterstrichen. Insbesondere bei Strukturen mit hoher struktureller Anisotropie können sie diese nicht adäquat erfassen. Die Gründen entsprechen denen im vorherigen Kapitel genannten. Dies muss bei der Verwendung dieser Methoden berücksichtigt werden. Die strukturelle Anisotropie wird lediglich durch das Verfahren zur Berechnung eines gemittelten Ellipsoids erfasst, wie anhand der Verläufe von \bar{b}_x , \bar{b}_y und \bar{b}_z in Abbildung 5.6a) und b) ersichtlich wird.

5.3.2 Reale Membranstrukturen

Für die Messung eines mittleren geometrischen Porenradius in realen Membranstrukturen werden insgesamt vier unterschiedliche Membranproben und die dazugehörigen experimentellen Porometriedaten (vgl. Kapitel 4.2.3) herangezogen, wobei die Proben A, B und C aus der Dissertation von Patrick Altschuh [3] stammen. Alle Auswertungen und Experimente für die Probe D wurden hingegen in Folge dieser Arbeit durchgeführt.

Bei den Ergebnissen in Tabelle 5.1 zeigt sich bei allen computergestützten Methoden ein deutlicher Trend: Die Werte der Proben A und B, die demselben Membrantyp entstammen, weisen vergleichbare Werte auf, während Probe C im Vergleich dazu größere gemessene Porenradien aufzeigt. Die größten Radien werden von allen Methoden in Probe D ermittelt. Dieser Trend stimmt mit den experimentell ermittelten Daten überein. Weiterhin zeigt sich die hierarchische Anordnung $\bar{b}_{PR, QR, MD} > r_{p, PNM} > r_p$, die vergleichbar mit den zuvor untersuchten synthetischen Strukturen ist. Bei der Berechnung der gemittelten Ellipsoide weisen die Werte entlang der Membrandicke (MD) den kleinsten Radius auf und in Produktionsrichtung (PR) einen leicht größeren Wert als quer zur Produktionsrichtung (QR). Somit weisen alle Proben eine orthotrope Anisotropie auf. Für die vorliegende Arbeit ist hauptsächlich die strukturelle Anisotropie in den lateralen Richtungen von Interesse. Daher wird in Tabelle 5.1 zusätzlich der Grad

Tabelle 5.1: Gegenüberstellung der computergestützten und experimentellen Methoden zur Berechnung eines gemittelten geometrischen Porenradius in realen Membranproben. Die experimentellen Werte und digitalen Zwillinge der Proben A, B und C stammen aus [3].

Parameter	Probe A	Probe B	Probe C	Probe D
r_p , PNM in (μm)	2,14	2,03	2,51	2,98
$\bar{b}_{\text{PR}} / 2$ in (μm)	3,06	2,91	3,24	3,77
$\bar{b}_{\text{QR}} / 2$ in (μm)	3,02	2,89	3,23	3,74
$\bar{b}_{\text{MD}} / 2$ in (μm)	2,89	2,76	3,13	3,70
DA_{lat} in (-) $\times 10^{-2}$	1,23	0,68	0,36	0,57
r_p in (μm)	1,73	1,67	2,16	2,36
\bar{r}_{MFP} in (μm)	1,53 \pm 0,11	1,53 \pm 0,11	1,64 \pm 0,12	1,98 \pm 0,05
$\bar{r}_{\text{MFP}}^{\text{max}}$ in (μm)	1,88 \pm 0,04	1,88 \pm 0,04	2,13 \pm 0,05	2,49 \pm 0,03
$\bar{r}_{\text{MFP}}^{\text{min}}$ in (μm)	1,49 \pm 0,21	1,49 \pm 0,21	1,64 \pm 0,12	1,97 \pm 0,05

der Anisotropie DA_{lat} in der lateralen Ebene berechnet

$$DA_{\text{lat}} = 1 - \frac{\bar{b}_{\text{QR}}}{\bar{b}_{\text{PR}}}. \quad (5.9)$$

Da stets $DA_{\text{lat}} > 0$ gilt, bedeutet dies, dass alle Membranproben bezüglich der lateralen Ebene eine leichte Ausrichtung der Stege entlang der Produktionsrichtung aufweisen.

Bei der Gegenüberstellung der ermittelten geometrischen Porenradien zeigen alle computergestützten Methoden eine Überschätzung im Kontrast zum experimentell ermittelten Wert von \bar{r}_{MFP} (vgl. Kapitel 4.2.3). Der mittlere geometrische Porenradius r_p , der auf der Skelettierung des Porenraums basiert, weist bei allen Proben die geringste Abweichung auf. Wie in [3] bereits gezeigt, lässt sich die Überschätzung von r_p mit der limitierenden Eigenschaft der Porometrie begründen. Sobald der schmalste Querschnitt entlang eines Porenpfades erreicht ist, wird der anliegende Druck auf den Porenradius umgerechnet. Auch wenn sich der Porenquerschnitt nach der detektierten Engstelle wieder vergrößert, wird dies nicht mehr in die Messung einbezogen, da eine größere Pore wiederum einem geringeren Druck entspricht, wodurch die Porometrie den Porenradius unterschätzt.

Bei der computergestützten Berechnung von r_p ist dies nicht der Fall, da aufgrund der Detektierung des EDFs entlang der Medial-Achse der komplette Porenraum berücksichtigt wird. Abschnitt 5.3.1 beleuchtet die Überschätzung von $r_{p, PNM}$ und $\bar{b}_{PR, QR, MD}$ ausführlich.

Zusammenfassend zeigt sich, dass die Berechnung von $r_{p, PNM}$ besser für poröse Strukturen geeignet ist, die nicht offenporig sind, wie beispielsweise geschlossensorige Schaumstrukturen. Die Methode aus der Kombination der Medial-Achse und des EDFs liefert hingegen für offenporige, hochporöse Strukturen mit geringer struktureller Anisotropie, wie sie in der vorliegenden Arbeit betrachtet werden, die beste Abbildung des geometrischen Porenradius. Dies basiert darauf, dass der gesamte Porenraum, einschließlich der Porenengstellen, berücksichtigt wird. Zusätzlich ermöglicht diese Methode nicht nur die Untersuchung des Porenraums, sondern auch des Strukturraums. Beide Methoden haben jedoch Limitierungen bei Strukturen, welche eine starke strukturelle Anisotropie aufweisen. Die Methode zur Berechnung einer gemittelten Ellipsoide und dem daraus abgeleiteten Porendurchmesser $\bar{b}_{PR, QR, MD}$ ist aufgrund ihrer Überschätzung des Porenraums nicht zur Berechnung eines geometrischen Porenradius geeignet. Dennoch bietet sie eine Möglichkeit zur Ermittlung einer strukturellen Anisotropie und wird daher im Folgenden ausschließlich dafür verwendet.

5.4 Einphasige Strömung in Porennetzwerkmodellen

Im Weiteren Verlauf wird das Porennetzwerkmodell verwendet, um das einphasige Strömungsverhalten in porösen Membranstrukturen zu analysieren. Zunächst erfolgt die Validierung der Genauigkeit der Strömungssimulation im Porennetzwerkmodell durch den Vergleich mit einphasigen Strömungssimulationen in vollständig aufgelösten voxelbasierten Strukturen. Anschließend wird der Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf das einphasige Strömungsverhalten sowohl in synthetischen als auch realen Membranen untersucht. Dadurch wird ein besseres

Verständnis für die experimentell beobachtete, richtungsabhängige Flüssigkeitsausbreitung in Diagnostikmembranen gewonnen.

5.4.1 Validierung

Zur Validierung der einphasigen Strömung in Porenetzwerkmodellen werden zunächst zwei Simulationsstudien zur Voruntersuchung durchgeführt. Die aus den Simulationen ableitbare Permeabilität K_{PNM} dient als Bewertungsmaß. Ihre Berechnung erfolgt basierend auf dem Druckabfall in einem PNM. K_{PNM} wird mit der Permeabilität K_{Vox} verglichen, die sich durch Lösen der Stokes-Gleichung in einer voxelbasierten, voll aufgelösten binären Struktur ergibt (vgl. Abschnitt 4.1.6). Der Wert von K_{Vox} wird als Sollwert angenommen, da die voxelbasierte Struktur im Vergleich zu einem PNM eine deutlich höhere Informationsdichte aufweist.

Variation der Porenanzahl bei konstanter Porosität

Die erste Simulationsstudie untersucht den Einfluss der Porenanzahl auf die Genauigkeit der einphasigen Strömungssimulation in Porenetzwerkmodellen. Hierzu wird der in Abschnitt 3.2.1 beschriebene Generierungsalgorithmus basierend auf einer Voronoizerlegung verwendet, um poröse Membranstrukturen mit variierender Porenanzahl zu erzeugen. Die Anzahl der Poren wird über die vorgegebene Anzahl an Voronoigeieten festgelegt, während die Porosität für alle Strukturen konstant bei 85 % gehalten wird. Die Gebietsgröße beträgt konstant $72\mu\text{m} \times 72\mu\text{m} \times 72\mu\text{m}$ mit einer räumlichen Auflösung von Δx , Δy und Δz von $160\text{nm}/\text{Voxel}$. Mit dieser Festlegung der Gebietsgröße führt eine Erhöhung der Porenanzahl unter Beibehaltung der Porosität zu einer Abnahme des Steg- und Porenradius. Insgesamt werden in dieser Studie 24 verschiedene Porenanzahlen untersucht. Um zusätzlich eine statistische Varianz sicherzustellen, werden für jede Porenanzahl drei unterschiedliche Strukturen erzeugt. Diese Strukturen weisen die gleichen grundlegenden Eigenschaften auf, unterscheiden sich jedoch in

ihrer Morphologie aufgrund einer variierenden Verteilung der initialen Voronoi-gebiete. Somit wurden für diese Studie insgesamt 72 voxelbasierte synthetische Membranstrukturen generiert und anschließend für jede Struktur das PNM mit der in Kapitel 5.2 beschriebenen Methode extrahiert. Darauf aufbauend wurde jede Struktur hinsichtlich der Permeabilitäten $K_{xx, \text{Vox}}$ und $K_{xx, \text{PNM}}$ entlang der x -Achse charakterisiert.

Abbildung 5.7a) stellt die Ergebnisse dieser Studie dar. Dabei werden die sich aus den einphasigen Strömungssimulationen ergebenden Permeabilitäten K_{Vox} und K_{PNM} über der Porenanzahl abgebildet. Weiterhin wird auf der rechten y -Achse die relative Abweichung der beiden Werte nach der Formel

$$\frac{K_{xx, \text{PNM}} - K_{xx, \text{Vox}}}{K_{xx, \text{Vox}}} \times 100 \% \quad (5.10)$$

dargestellt. Es zeigt sich, dass die Verläufe von $K_{xx, \text{Vox}}$ und $K_{xx, \text{PNM}}$ vergleichbare Trends aufweisen: Mit steigender Porenanzahl nimmt die Permeabilität ab. Dies lässt sich mit der zuvor beschriebenen Abnahme des Steg- und Porenradius

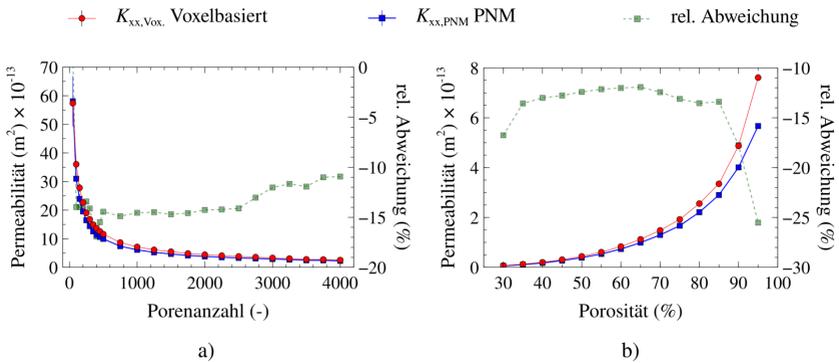


Abbildung 5.7: In a) werden die Ergebnisse der Simulationsstudie zum Einfluss der Porenanzahl bei einer konstanten Porosität von 85 % und in b) die Ergebnisse der Simulationsstudie zur Analyse des Einflusses der Porosität bei einer konstanten Porenanzahl von 3000 Poren auf die Aussagekraft der einphasigen Strömungssimulation in Porennetzwerkmodellen präsentiert. Für jeden Ergebnispunkt wird der Mittelwert und die Standardabweichung basierend auf drei Strukturen gezeigt.

begründen. Abschnitt 6.5.6 geht explizit darauf ein. Bei der Analyse der Fehlerbalken der Permeabilitätskurven, die die zuvor beschriebene Varianz dreier Morphologien widerspiegeln, ist zudem erkennbar, dass die relative Standardabweichung für $K_{xx, \text{Vox.}}$ und $K_{xx, \text{PNM}}$ bei Strukturen mit einer Porenanzahl von ≥ 250 unter zwei Prozent liegt. Demzufolge liefern die einphasigen Strömungssimulationen in diesem Bereich keine zufälligen, sondern gezielt reproduzierbare Ergebnisse. Für die Strukturen mit einer Porenanzahl von < 250 liegt die relative Standardabweichung für $K_{xx, \text{Vox.}}$ unter fünf Prozent, wohingegen für $K_{xx, \text{PNM}}$ relative Standardabweichungen von bis zu 15 % vorliegen. Diese vergleichbar hohe Abweichung bei $K_{xx, \text{PNM}}$ lässt sich auf den Effekt der Randporen zurückführen. In der einphasigen Strömungssimulation im PNM wird an den Randporen eine konstante Druckrandbedingung gesetzt, was das Ergebnis bei geringer Porenanzahl stark beeinflussen kann. Die nachfolgende Analyse der relativen Abweichung von $K_{xx, \text{PNM}}$ zu $K_{xx, \text{Vox.}}$ berücksichtigt daher nur Strukturen mit einer Porenanzahl von ≥ 250 . Zudem wird für folgende Simulationsstudien darauf geachtet, eine ausreichend große Porenanzahl zu wählen. Die relative Abweichung der Permeabilität zeigt im betrachteten Bereich durchschnittlich einen Wert von $-13,2\%$, wobei das PNM stets den Wert der voxelbasierten Strömungssimulation unterschätzt. Angesichts der erheblichen Reduktion der Informationsdichte und der damit verbundenen Rechenzeit von einer voll aufgelösten voxelbasierten Struktur zu einem PNM, stellt dies einen akzeptablen Fehler dar. Insbesondere, da der Trend mithilfe der einphasigen Strömung in Porennetzwerkmodellen deutlich abgebildet werden kann.

Variation der Porosität bei konstanter Porenanzahl

Die zweite Simulationsstudie untersucht den Einfluss der Porosität, bei konstanter Porenanzahl, auf die Genauigkeit der einphasigen Strömungssimulation in Porennetzwerkmodellen. Um poröse Membranstrukturen mit variierender Porosität zu erzeugen, wird hierzu wie bei der ersten Simulationsstudie der in Abschnitt 3.2.1 beschriebene Generierungsalgorithmus verwendet. Die Gebietsgröße bleibt wie zuvor konstant bei $72\mu\text{m} \times 72\mu\text{m} \times 72\mu\text{m}$ mit einer räumlichen

Auflösung von Δx , Δy und Δz von 160 nm/Voxel. Die Anzahl der Voronoige-biete beziehungsweise der Poren bleibt konstant bei einem Wert von 3000. Die Porosität wird in einem Bereich von 30 % bis 95 % mit einer Schrittweite von fünf Prozent variiert. Es werden entsprechend insgesamt vierzehn verschiedene Porositäten untersucht. Um zusätzlich eine statistische Varianz sicherzustellen, werden für jede Porosität drei unterschiedliche Strukturen erzeugt. Insgesamt wurden für diese Studie somit 42 voxelbasierte synthetische Membranstrukturen generiert. Anschließend wurde für jede Struktur das PNM mithilfe der in Kapitel 5.2 beschriebenen Methode extrahiert. Aufbauend darauf wurde, wie in der zuvor gezeigten Simulationsstudie, jede Struktur hinsichtlich der Permeabilitäten $K_{xx, \text{Vox}}$ und $K_{xx, \text{PNM}}$ entlang der x -Achse charakterisiert.

Die Ergebnisse dieser Simulationsstudie sind in Abbildung 5.7b) dargestellt. Es zeigt sich, ähnlich wie in der vorangegangenen Studie, dass der Trend des Permeabilitätsverlaufs von $K_{xx, \text{PNM}}$ dem des Sollwerts von $K_{xx, \text{Vox}}$ entspricht. Mit zunehmender Porosität steigt die Permeabilität an. Das resultiert aus der Zunahme des geometrischen Porenradius und der gleichzeitigen Abnahme des Stegradus bei konstanter Anzahl von Stegen, was eine Verringerung der intrinsischen Membranoberfläche und dem daraus resultierenden Reibungswiderstand zur Folge hat (siehe Abschnitt 6.5.6). Bei der Analyse der Fehlerbalken der Permeabilitätskurven, die die zuvor beschriebene Varianz dreier Morphologien widerspiegeln, ist weiterhin erkennbar, dass die relative Standardabweichung sowohl für $K_{xx, \text{Vox}}$ als auch $K_{xx, \text{PNM}}$ bei allen Porositäten unter drei Prozent liegt. Dies bestätigt erneut, dass die einphasigen Strömungssimulationen basierend auf einem PNM nicht zufällige, sondern gezielt reproduzierbare Ergebnisse liefern. Die relative Abweichung von $K_{xx, \text{PNM}}$ zu $K_{xx, \text{Vox}}$ gemäß Gleichung 5.10 zeigt für Strukturen mit Porositäten ≤ 85 % im Durchschnitt einen Wert von $-13,1$ % an. Dies ähnelt den Abweichungen der vorherigen Simulationsstudie. Für die Strukturen mit Porositäten von 90 % und 95 % ergeben sich höhere relative Abweichungen von $-17,7$ % und $-25,5$ %, da der Porenraum bei solch hohen Porositäten mittels eines Porennetzwerkmodells nicht mehr adäquat abgebildet werden kann. Erneut unterschätzt das PNM stets den Permeabilitätswert verglichen mit der voxelbasierten Strömungssimulation. Die Unterschätzung resultiert daraus, dass das

PNM den Porenraum tendenziell kleiner abbildet. Es berücksichtigt beispielsweise nur die größte Kugel, die in ein Porensegment passt.

Laufzeitvergleich

Um den Unterschied der Simulationslaufzeiten der einphasigen Strömung zwischen den beiden Methoden zu verdeutlichen, wird die benötigte Prozessorzeit, beginnend mit dem digitalen Zwilling einer porösen Membranstruktur bis hin zur Ermittlung der Permeabilitätswerte für unterschiedliche Strukturen in einer Laufzeitstudie gemessen und gegenübergestellt. Dafür werden insgesamt fünf kubische Membranstrukturen mit variierenden Kantenlängen von 100, 200, 300, 400 und 500 Voxeln erzeugt und anschließend ausgewertet. Die Berechnungen erfolgten auf einem Computer mit einem Intel®Xeon®Gold 6146 Prozessor mit 3,20 GHz, 24 Kernen und 768 Gigabyte Arbeitsspeicher. Um eine verbesserte Vergleichbarkeit zu gewährleisten, wurden die Berechnungen auf einem einzelnen Prozessor durchgeführt. Beide Methoden sind jedoch auch für eine parallele Verarbeitung geeignet.

Abbildung 5.8 präsentiert die Ergebnisse der Laufzeitstudie, wobei die benötigte Prozessorzeit abhängig von der Kantenlänge der Membranstrukturen betrachtet

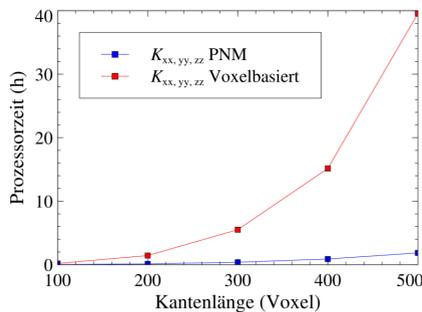


Abbildung 5.8: Laufzeitvergleich der Berechnung der Permeabilitäten entlang der drei Raumrichtungen mittels der voxelbasierten Methode und der Methode, die auf der Extraktion eines Porennetzwerkmodells basiert. Gemessen wurde die benötigte Prozessorzeit, beginnend mit dem digitalen Zwilling einer porösen Membranstruktur bis hin zur Ermittlung der Permeabilitätswerte.

wird. Es zeigt sich deutlich, dass der Einsatz des Porennetzwerkmodells zu einer erheblichen Reduktion der Rechenzeit führt. So benötigt die Berechnung mit der voxelbasierten Methode bei einer Kantenlänge von 500 Voxeln beispielsweise eine um den Faktor 21,37 längere Rechenzeit.

Zusammenfassend wurde in diesem Abschnitt gezeigt, dass das gemäß Kapitel 5.2 extrahierte Porennetzwerkmodell in Verbindung mit der Methode aus Abschnitt 4.1.6 für synthetische Strukturen mit einer Porenanzahl von mindestens 250 und Porositäten $\leq 85\%$ valide Permeabilitätswerte K_{PNM} liefert. Im Vergleich zum Sollwert K_{Vox} wird die Permeabilität K_{PNM} stets mit einer akzeptablen relativen Abweichung von etwa 13,15% unterschätzt. Die Abweichung in der Permeabilitätsberechnung mittels des Porennetzwerkmodells wird aufgrund der erheblichen Reduktion der Rechenzeit als akzeptabel erachtet. Diese Methode wird daher im Weiteren genutzt, um den Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf die Permeabilität in porösen Membranstrukturen zu analysieren.

5.4.2 Anisotrope synthetische Membranstrukturen

Dieses Kapitel untersucht den Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf die Permeabilität in porösen Membranen. Zu diesem Zweck wird das Strömungsverhalten in transversal isotropen und in orthotropen Membranstrukturen analysiert.

Transversal isotrope Membranstrukturen

Zur Untersuchung transversal isotroper Strukturen werden die in Abschnitt 5.3.1 generierten synthetischen Membranstrukturen verwendet, die alle eine strukturelle Ausrichtung entlang der x -Richtung aufweisen. Für jede Struktur werden die Permeabilitäten $K_{xx,\text{PNM}}$, $K_{yy,\text{PNM}}$ und $K_{zz,\text{PNM}}$ in alle drei Raumrichtungen berechnet.

In Abbildung 5.9a) sind die dazugehörigen Ergebnisse dargestellt, wobei die ermittelte Permeabilität abhängig vom Grad der Anisotropie aufgeführt ist. Jeder

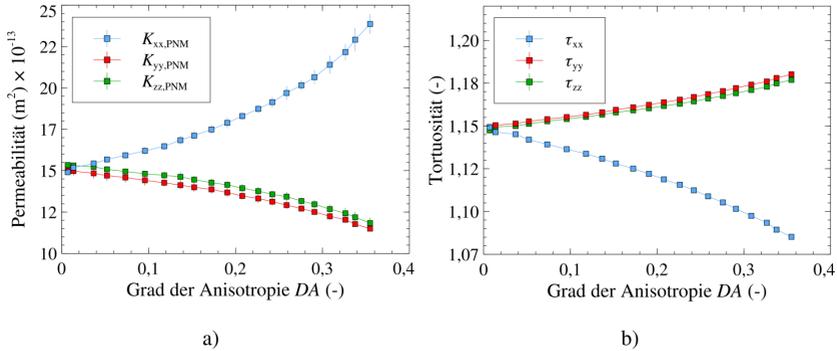


Abbildung 5.9: In a) wird das Verhalten der richtungsabhängigen Permeabilitätswerte $K_{xx,PNM}$, $K_{yy,PNM}$ und $K_{zz,PNM}$ in Bezug auf den Grad der Anisotropie DA für die in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen transversal isotropen Strukturen dargestellt. Abbildung b) zeigt die dazu korrespondierenden, computergestützt ermittelten Tortuositätswerte. Für jeden Ergebnispunkt wird der Mittelwert und die Standardabweichung basierend auf fünf Strukturen gezeigt.

Punkt repräsentiert den Mittelwert von fünf verschiedenen Strukturen mit gleichen Eigenschaften, aber unterschiedlicher Morphologie. Die Fehlerbalken zeigen die zugehörige Standardabweichung. Es fällt in der Abbildung deutlich auf, dass für $DA > 0.0$ die Permeabilität $K_{xx,PNM}$ entlang der x -Richtung stets größer ist als in den verbleibenden Raumrichtungen. $K_{yy,PNM}$ und $K_{zz,PNM}$ weisen hingegen miteinander vergleichbare Werte auf. Dieser Aspekt, zusammen mit der Erkenntnis, dass bei den isotropen Strukturen mit $DA \sim 0.0$ eine richtungsunabhängige Permeabilität vorliegt, deutet darauf hin, dass eine gezielte Ausrichtung der Stegstruktur in x -Richtung das Strömungsverhalten entlang dieser Richtung begünstigt. Diese Beobachtung lässt sich durch die Richtungsabhängigkeit der Tortuosität τ erklären. Die Tortuosität wurde gemäß der in Abschnitt 4.1.5 beschriebenen Methode in allen 110 Strukturen entlang der drei Raumrichtungen (x, y, z) berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.9b) dargestellt. Im Vergleich zur Permeabilität lässt sich ein entgegengesetzter Trend erkennen: In Strukturen mit einer Anisotropie von $DA > 0.0$ weist die Tortuosität τ_{xx} in der

ausgerichteten x -Richtung konsequent niedrigere Werte im Vergleich zu den anderen Raumrichtungen auf, wohingegen τ_{yy} und τ_{zz} untereinander vergleichbare Werte zeigen. Unter Anwendung der Kozeny-Carman-Gleichung [76–78]

$$K^{KC} = \frac{1}{C_{KC}\tau^2} \frac{\varepsilon^3}{S}, \quad (5.11)$$

in der C_{KC} die empirisch zu bestimmende Kozeny-Carman-Konstante, ε die Porosität und S die spezifische Oberfläche der intrinsischen Membranstruktur darstellen lässt sich das anisotrope Verhalten der Permeabilität erklären. Dies gilt insbesondere, wenn die makroskopischen Eigenschaften von C_{KC} , ε und S der hier untersuchten Strukturen identisch sind, und die niedrigere gemessene Tortuosität τ_{xx} entlang der ausgerichteten Richtung somit eine erhöhte Permeabilität K_{xx} zur Folge hat.

Die vorangegangene Untersuchung transversal isotroper Membranstrukturen hat somit gezeigt, dass die Permeabilität entlang der Streckungsrichtung größere Werte annimmt als senkrecht dazu.

Orthotrope Membranstrukturen

Zur weiteren Analyse der Auswirkungen einer orthotropen Anisotropie auf das Strömungsverhalten in Membranstrukturen wird in diesem Abschnitt die einphasige Strömung innerhalb der in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen synthetischen orthotropen Strukturen untersucht. Dazu werden wie bei der vorangegangenen Simulationsstudie für jede Struktur die Permeabilitäten $K_{xx,PNM}$, $K_{yy,PNM}$ und $K_{zz,PNM}$ in allen drei Raumrichtungen berechnet.

Abbildung 5.10a) stellt die aus Basis der einphasigen Strömungssimulationen berechneten Permeabilitätswerte in Abhängigkeit vom ersten Anisotropiegrad DA_1 dar. DA_1 wird gemäß Gleichung 5.7 berechnet. In Abbildung 5.10 wird nur der Verlauf in Bezug auf DA_1 betrachtet, da die Abhängigkeit von DA_2 einen

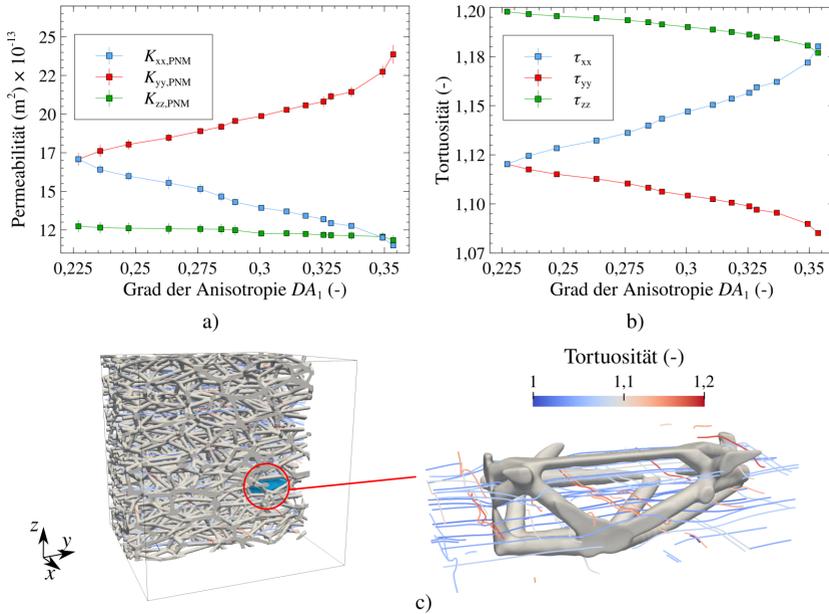


Abbildung 5.10: Abbildung a) illustriert das Verhalten der richtungsabhängigen Permeabilitätswerte $K_{xx,PNM}$, $K_{yy,PNM}$ und $K_{zz,PNM}$ in Bezug auf den Anisotropiegrad DA_1 . Dies geschieht für die in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen orthotropen Membranstrukturen. In b) werden die entsprechenden Tortuositätswerte dargestellt. Abbildung c) zeigt anhand eines Porensegmentes einer Membranstruktur mit einem Anisotropiegrad von $DA_1 = 0,354$ und $DA_2 = 0,0$, wie eine Ausrichtung der Struktur in y -Richtung die Tortuositätstransportwege beeinflusst. Für jeden Ergebnispunkt wird der Mittelwert und die Standardabweichung basierend auf fünf Strukturen gezeigt.

ähnlichen Trend aufzeigt. Der Vergleich der Permeabilitäten mit der strukturellen Anisotropie $\bar{b}_{x,y,z}$ aus den gemittelten Ellipsoiden des Porenraums in Abbildung 5.6a) offenbart eine deutliche Staffelung der Permeabilität. Das Verhältnis $\bar{b}_z \leq \bar{b}_x \leq \bar{b}_y$ führt hier stets dazu, dass $K_{zz,PNM} \leq K_{xx,PNM} \leq K_{yy,PNM}$ gilt. Daraus schließt sich, dass bei der Analyse einer porösen Struktur die Reihenfolge der strukturellen Anisotropie eine entsprechende Staffelung in der resultierenden Permeabilität nach sich zieht. Dies kann erneut anhand der in Abbildung 5.10b) dargestellten, computergestützt ermittelten Tortuositätswerte in den drei Raumrichtungen erklärt werden. Ähnlich wie bei den transversal isotropen

Membranstrukturen zeigt sich, dass eine Staffelung von $\bar{b}_z \leq \bar{b}_x \leq \bar{b}_y$ zu einer im Vergleich zur Permeabilität umgekehrten Reihenfolge in den Tortuositätswerten $\tau_{yy} \leq \tau_{xx} \leq \tau_{zz}$ führt. Die Gründe für die reduzierte Tortuosität in der gestreckten Richtung werden in Abbildung 5.10c) anhand einer Struktur mit $DA_1 = 0,354$ und $DA_2 = 0,0$ veranschaulicht. Hier werden die Transportpfade, basierend auf der Berechnung der Tortuosität sowohl in der gestreckten y -Richtung als auch in der x -Richtung dargestellt. Es wird deutlich, dass die Tortuosität in der nicht gestreckten x -Richtung höher ist, da zum Zurücklegen der gleichen Strecke mehr Hindernisse und Stege umgangen werden müssen im Vergleich zur y -Richtung. Die Untersuchung der einphasigen Strömung in synthetischen Membranstrukturen hat abschließend aufgezeigt, dass eine vorhandene strukturelle Anisotropie einen direkten Einfluss auf das Strömungsverhalten ausübt. Sowohl bei transversal isotropen als auch bei orthotropen Strukturen offenbarte sich ein deutlicher Trend: Die Permeabilität entlang der gestreckten Raumrichtungen ist im Vergleich zu den anderen Richtungen erhöht, während die Tortuosität ein umgekehrtes Verhalten zeigt.

5.4.3 Reale Membranstrukturen

In diesem Kapitel wird das vorgestellte Porennetzwerkmodell eingesetzt, um die Permeabilitätsberechnungen in realen rekonstruierten Membranstrukturen zu analysieren. Hierfür werden erneut die vier unterschiedlichen Membranproben aus Abschnitt 5.3.2 verwendet.

Zunächst wird der Einfluss der Bildauflösung auf das Ergebnis untersucht. Dies geschieht durch eine schrittweise Verfeinerung der Bildauflösung Δx von 600 nm/Voxel zu 75 nm/Voxel. Für eine bessere Übersichtlichkeit konzentriert sich die Untersuchung auf die Permeabilitäten entlang der lateralen Richtungen, sowohl parallel (PR) als auch quer zur Produktionsrichtung (QR), da diese für den Transport der Probenflüssigkeit in einem Lateral-Flow-Test von Interesse sind.

In Abbildung 5.11a) und 5.11b) zeigt sich, dass der Verlauf der gemessenen Permeabilitäten für alle Proben mit einer Verfeinerung der Bildauflösung ein asymptotisches Verhalten aufweist. Dies bedeutet, dass eine Verfeinerung der Bildauflösung zu keiner Veränderung des Ergebnisses führt. Für alle Proben zeigt sich weiterhin, dass die relative Abweichung der Werte $K_{PR,PNM}$ und $K_{QR,PNM}$ bezüglich des Wertes mit der feinsten Bildauflösung bereits bei einer Auflösung von $\Delta x \leq 120\text{nm/Voxel}$ unter fünf Prozent liegt. Dies deutet darauf hin, dass für einphasige Strömungsuntersuchungen in realen Membranstrukturen eine Bildauflösung von $\Delta x \leq 120\text{nm/Voxel}$ angestrebt werden sollte, um auflösungsneutrale Ergebnisse zu erzielen.

Die Ergebnisse der Permeabilitätswerte in den realen Membranproben sind in Tabelle 5.2 abgebildet. Wie in den vorherigen Untersuchungen in synthetischen anisotropen Strukturen zeigt der Vergleich der Richtungsabhängigkeit der Permeabilität, dass bei allen Proben mit $DA_{lat} > 0$ die Permeabilität in Produktionsrichtung stets größer ist als quer dazu, unabhängig vom gewählten Ansatz. Entsprechend gilt für alle vier Proben $\tau_{PR} < \tau_{QR}$.

Um zu überprüfen, ob die Simulationen der einphasigen Strömung in realen Membranstrukturen ebenfalls valide Ergebnisse liefern, werden erneut die Permeabilitätswerte K_{PNM} und K_{Vox} verglichen. Im Vergleich zu den einphasigen

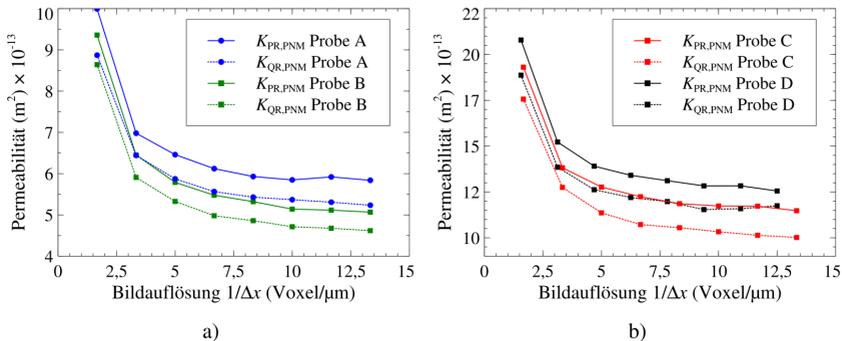


Abbildung 5.11: Untersuchung zum Einfluss der Bildauflösung auf die Berechnung von K_{PNM} , wobei in a) die Ergebnisse der realen Membranproben A und B und in b) der Proben C und D gezeigt sind.

Tabelle 5.2: Vergleich der berechneten Permeabilitätswerte, ermittelt durch die Simulation der einphasigen Strömung in einem Porennetzwerkmodell (K_{PNM}) und auf einem vollständig aufgelösten voxelbasierten Gitter ($K_{\text{Vox.}}$) für die vier realen Membranproben A, B, C und D. Zudem werden der festgestellte Anisotropiegrad DA_{lat} , die Porosität ε und die Tortuosität τ dargestellt.

Parameter	Probe A	Probe B	Probe C	Probe D
$K_{\text{PR, PNM}}$ in $(\text{m}^2) \times 10^{-13}$	5,84	5,07	11,48	15,26
$K_{\text{QR, PNM}}$ in $(\text{m}^2) \times 10^{-13}$	5,23	4,62	10,02	13,88
$K_{\text{PR, Vox.}}$ in $(\text{m}^2) \times 10^{-13}$	7,78	6,86	16,83	23,00
$K_{\text{QR, Vox.}}$ in $(\text{m}^2) \times 10^{-13}$	7,30	6,45	15,54	21,71
$\Delta K_{\text{PR}}/K_{\text{PR, Vox.}}$ in (%)	-24,94	-26,09	-31,79	-33,65
$\Delta K_{\text{QR}}/K_{\text{QR, Vox.}}$ in (%)	-28,36	-28,37	-35,52	-36,07
DA_{lat} in $(-)$ $\times 10^{-2}$	1,23	0,68	0,36	0,57
ε in (%)	82,40	82,02	88,90	89,86
τ_{PR} (-)	1,198	1,211	1,119	1,119
τ_{QR} (-)	1,214	1,214	1,121	1,128

Strömungssimulationen in synthetischen Strukturen zeigt sich in Tabelle 5.2 für alle Proben eine deutlich größere relative Abweichung. Diese, berechnet nach Gleichung 5.10, übersteigt bei allen Werten 24 %. Für die Probe C und D fallen die Abweichungen dabei höher aus als für die zwei verbleibenden Proben. Dies ist auf den in Abschnitt 5.4.1 dargestellten Sachverhalt zurückzuführen, dass einphasige Strömungssimulationen in einem Porennetzwerkmodell bei porösen Strukturen mit Porositäten über 85 % keine zuverlässigen Ergebnisse liefern. Bei den Proben A und B kann die relativ hohe Abweichung darauf zurückgeführt werden, dass bei der Rekonstruktion der realen Membranproben Strukturartefakte im Porenraum vorhanden sind, die aufgrund von Rauscheffekten in der Bildgebung entstanden sind und keinen Anschluss an die eigentliche Struktur haben. Dies wird in Abbildung 5.12b1) verdeutlicht, in der ein Ausschnitt einer rekonstruierten Membran abgebildet ist, in der die frei im Porenraum hängenden Strukturartefakte bunt hervorgehoben sind. Diese führen zu einer Übersegmentierung des Porenraums, was durch den Vergleich der Abbildungen 5.12c1) und 5.12c2)

deutlich wird. Diese Abbildungen zeigen die Segmentierung des Porenraums der in Abbildung 5.12a) dargestellten Membranstruktur, wobei für die Segmentierung in Abbildung 5.12c2) die Strukturartefakte, wie in Abbildung 5.12b2) zu sehen ist, herausgefiltert wurden. Diese Übersegmentierung aus Abbildungen 5.12c1) bewirkt bei der Extraktion des PNM eine überhöhte Anzahl an detektierten Poren, was die Abbildungen 5.12d1) und 5.12d2) veranschaulichen. Daraus resultiert ein erhöhter Druckverlust in der einphasigen Strömungssimulation, was folglich eine Unterschätzung der Permeabilität nach sich zieht. Dieser Übersegmentierung lässt sich durch einen Nachbearbeitungsschritt während der Strukturrekonstruktion begegnen, indem die freischwebenden Strukturartefakte herausgefiltert werden.

Tabelle 5.3 stellt die Auswirkungen dieser Filterung dar. Dazu wurden die Strukturartefakte in den Membranproben A und B vor der Extraktion des PNM entfernt, wobei eine Bildauflösung von 120 nm/Voxel vorliegt. Die Analyse zeigt,

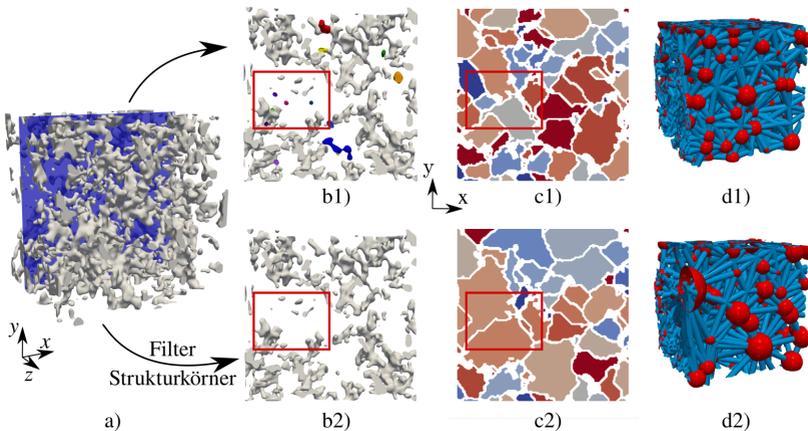


Abbildung 5.12: In b1) sind die frei im Porenraum schwebenden Strukturartefakte eines vergrößerten Ausschnitts der in a) abgebildeten porösen Membranstruktur farblich markiert. In b2) wird derselbe Ausschnitt gezeigt, jedoch wurden hier die Strukturartefakte herausgefiltert und entfernt. Die Abbildungen c1) und c2) präsentieren die entsprechende Segmentierung des Porenraums. Dabei wird im rot markierten Bereich deutlich, dass in c2) durch das Entfernen der Strukturartefakte weniger Segmente detektiert wurden als in c1). In d1) und d2) wird das jeweilige extrahierte PNM für den Ausschnitt aus a) visualisiert.

dass die Strukturartefakte einen geringfügigen Einfluss auf die voxelbasierten Parameter ausüben. Dies wird unter anderem an der nach der Filterung gemessenen Porosität ε^* deutlich, die sich bei beiden Proben um maximal 0,4 % zu ε ändert, was den geringen Volumenanteil der Strukturartefakte an der Gesamtstruktur verdeutlicht. Bei der Berechnung der einphasigen Strömung in einem Porennetzwerkmodell hingegen wirken sich diese Strukturartefakte aufgrund der bereits erwähnten Übersegmentierung deutlich aus, was sich in den Werten von K_{PNM}^* widerspiegelt. Durch die Filterung steigen diese Werte im Vergleich zu den in Tabelle 5.2 gelisteten Werten von K_{PNM} um $\sim 28\%$. Dadurch kommt es zu einer signifikanten Verringerung der relativen Abweichung zwischen K_{PNM}^* und $K_{\text{Vox.}}$, wobei K_{PNM}^* weiterhin den Wert $K_{\text{Vox.}}$ unterschätzt. Für die Probe B beträgt diese Abweichung maximal 11,01 % und für die Probe A maximal 7,53 %. Die Analyse der einphasigen Flüssigkeitsausbreitung in vier realen Membranstrukturen bestätigte den bei synthetischen Strukturen beobachteten Trend, dass eine vorhandene strukturelle Anisotropie die Richtungsabhängigkeit der Permeabilität und der Tortuosität unmittelbar beeinflusst. Des Weiteren ergab die Analyse von zwei rekonstruierten realen Proben, dass für Membranstrukturen mit einer Porosität $\varepsilon \leq 85\%$, nach einer Filterung der Struktur, präzise Permeabilitätswerte mit Hilfe eines Porennetzwerkmodells bestimmt werden können.

Tabelle 5.3: Permeabilitätswerte, errechnet durch die Simulation der einphasigen Strömung in einem Porennetzwerkmodell (K_{PNM}^*), nachdem die in Abbildung 5.12c1) dargestellten Strukturartefakte bei den Membranproben A und B entfernt wurden. Zusätzlich ist die nach der Filterung berechnete Porosität ε^* aufgeführt.

Parameter	Probe A	Probe B
$K_{\text{PR, PNM}}^*$ in $(\text{m}^2) \times 10^{-13}$	7,66	6,54
$K_{\text{QR, PNM}}^*$ in $(\text{m}^2) \times 10^{-13}$	6,75	5,74
$(K_{\text{PR, PNM}}^* - K_{\text{PR, Vox.}}) / K_{\text{PR, Vox.}}$ in (%)	-1,54	-4,67
$(K_{\text{QR, PNM}}^* - K_{\text{QR, Vox.}}) / K_{\text{QR, Vox.}}$ in (%)	-7,53	-11,01
ε^* in (%)	82,75	82,39

5.5 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde die Implementierung eines Algorithmus zur Extraktion eines Porennetzwerkmodells aus den digitalen Abbildern poröser Strukturen eingeführt. Der Algorithmus beruht auf der Segmentierung des Porenraums in unterschiedliche Bereiche und der anschließenden detaillierten Definition und Auswertung dieser Segmente. Durch die Validierung dieser Extraktion konnte gezeigt werden, dass der Porenraum durch ein PNM adäquat abgebildet werden kann und dies eine zeit- und kostensparende Möglichkeit zur Charakterisierung poröser Strukturen bietet.

Weiterhin wurde das Porennetzwerkmodell verwendet, um drei verschiedene Methoden zur Berechnung eines geometrischen Porenradius in Membranstrukturen zu evaluieren. Die erste Methode – die Berechnung eines geometrischen Porenradius $r_{p, \text{PNM}}$ – basiert auf dem extrahierten Porennetzwerkmodell, wobei die Radien der extrahierten Poren zur Berechnung von $r_{p, \text{PNM}}$ berücksichtigt werden. Der zweite Ansatz – die Berechnung eines gemittelten Ellipsoids – basiert auf dem im Verlauf dieser Arbeit entwickelten Verfahren aus Kapitel 4.1.3, wobei aufbauend auf der Segmentierung des Porenraums ein Ellipsoid abgeleitet wird, welches die Orientierung sowie Ausbreitung der Struktur reflektiert. Die dritte Methode – Berechnung eines mittleren Porenradius r_p – basiert auf der Kombination einer Medial-Achse und eines Distanzfelds des Porenraums (vgl. Kapitel 4.1.2). Abbildung 5.4 veranschaulicht die Unterschiede zwischen diesen drei Methoden. Die Anwendung dieser Methoden auf sowohl synthetische als auch real rekonstruierte Membranstrukturen hat gezeigt, dass die erste Methode den geometrischen Porenradius für offenporige Membranstrukturen, wie sie in dieser Arbeit behandelt werden, überschätzt. Sie eignet sich besser für die Berechnung in geschlossenporigen Strukturen. Die zweite Methode neigt ebenfalls zur Überschätzung des geometrischen Porenradius, bietet aber als einzige die Möglichkeit, eine strukturelle Anisotropie abzubilden. Daher wird sie fortan ausschließlich für diesen Zweck eingesetzt. Die dritte Methode erzielt im Vergleich zu experimentellen Untersuchungen die genauesten Ergebnisse bei der Analyse von offenporigen Membranstrukturen ohne ausgeprägte strukturelle Anisotropie.

Deshalb wird diese Methode im Weiteren zur Berechnung des geometrischen Porenradius verwendet.

Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wurde das Porennetzwerkmodell eingesetzt, um das einphasige Strömungsverhalten und insbesondere die Permeabilität als Strukturparameter zu untersuchen. Zunächst wurde anhand synthetischer Membranstrukturen demonstriert, dass dieser Ansatz für Strukturen mit einer Porosität von $\leq 85\%$ valide Permeabilitätswerte bei deutlich reduzierter Rechenzeit liefert. Darüber hinaus wurde die einphasige Strömungssimulation in einem PNM genutzt, um einen direkten Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf das Strömungsverhalten zu belegen. Die Untersuchungen dazu fanden sowohl in synthetischen als auch realen anisotropen Membranstrukturen statt. Dabei zeigte sich der deutliche Trend, dass die Permeabilität entlang der ausgerichteten Raumrichtung höhere Werte aufweist als in den anderen Richtungen. Dies lässt sich durch die Tortuosität erklären, die ein entgegengesetztes Verhalten aufweist. Dieser Trend ließ sich ebenfalls in den vier realen rekonstruierten Membranproben nachweisen.

Bei der Bestimmung der Permeabilität mittels eines extrahierten Porennetzwerkmodells hat sich bei realen Membranstrukturen gezeigt, dass die digitalen Zwillinge der Membranproben einen zusätzlichen Filterungsschritt erfordern, bei dem frei schwebende Strukturartefakte entfernt werden müssen, um aussagekräftige Ergebnisse zu erzielen. Mit Einbeziehung dieses Filterungsschrittes lässt sich das vorgestellte Modell nutzen, um eine zeit- und kostensparende Charakterisierung der Permeabilität in realen Membranproben durchzuführen. Entsprechend kann der Prozess für die Qualitätskontrolle während des Herstellungsprozesses eingesetzt werden.

6 Struktureller Einfluss auf das Wickingverhalten

In diesem Kapitel wird eine Verbindung zwischen der Mikrostrukturmorphologie und dem makroskopischen Materialverhalten poröser Diagnostikmembranen hergestellt, auch bekannt als Struktur-Eigenschaft-Beziehung. Diese Verbindung ermöglicht das Vorhersagen des Materialverhaltens und die optimale Auslegung von Membranen. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Struktur-Eigenschaft-Beziehung für das kapillargetriebene Wickingverhalten durch hochporöse, offeneporige polymere Membranen durch einen datengetriebenen Ansatz ermittelt. Zu diesem Zweck werden 162 poröse Mikrostrukturen mit unterschiedlichen geometrischen Merkmalen algorithmisch generiert und in 3D charakterisiert. Anschließend werden strukturelle Wechselwirkungen analysiert, um darauf aufbauend die Wickingzeit über ein Wickingmodell auf der makroskopischen Skala abzuleiten. Abbildung 6.1 stellt diese Struktur-Wicking-Beziehung schematisch dar.

6.1 Stand der Forschung

Zur Modellierung des makroskopischen Wickingverhalten in porösen Mikrostrukturen existieren zahlreiche Modelle. Die beiden vorherrschenden stützen sich auf die Lucas-Washburn-Gleichung und das Darcy-Gesetz, welche in der Fachliteratur [4, 30, 33, 34] und Kapitel 2.2.6 umfassend erörtert werden. Ein gemeinsames Merkmal dieser Ansätze ist die Notwendigkeit, effektive Strukturparameter zu verwenden, um den Wickingprozess vorherzusagen. Diese Parameter wie die Porosität und die Permeabilität können entweder durch experimentelle

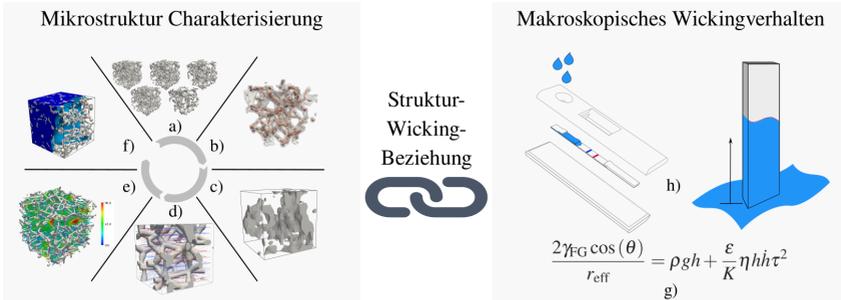


Abbildung 6.1: Darstellung der Arbeitsabfolge zur Erstellung der Struktur-Wicking-Beziehung in Membranen. Links werden in a) auf der Mikroskala synthetische Strukturen mit unterschiedlichen Eigenschaften generiert, anschließend wird in b) für jede Struktur der mittlere Stegradius, in c) die Porosität, in d) die Tortuosität, in e) die Permeabilität und in f) der effektive Porenradius ermittelt. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse werden verwendet, um auf der makroskopischen Skala mittels des in g) abgebildeten Wickingmodells das in h) dargestellte Wickingverhalten in medizinischen Schnelltests vorherzusagen zu können.

Untersuchungen bestimmt oder als Anpassungsparameter abgeleitet werden [79]. In beiden Fällen sind kostspielige experimentelle Untersuchungen notwendig. Alternativ ist es möglich, die Strukturparameter computergestützt aus einem repräsentativen Volumenelement der Mikrostruktur zu extrahieren, um daraus das makroskopische Wickingverhalten vorherzusagen [23]. Zur adäquaten Modellierung dieses kapillargetriebenen Verhaltens, ist die Darstellung des Kapillardrucks Δp_c von zentraler Bedeutung. Als treibende Kraft wird dieser Druck üblicherweise mithilfe der Young-Laplace-Gleichung (vgl. Abschnitt 2.2.4) modelliert. Dieser beschreibt die Druckdifferenz, die auf die Grenzfläche zwischen zwei nicht mischbaren Flüssigkeiten wirkt, wie folgt

$$\Delta p_c = \frac{2\gamma_{FG} \cos(\theta_e)}{r_{\text{eff}}}. \quad (6.1)$$

Für die Modellierung dieser treibenden Kraft ist insbesondere die Ermittlung des effektiven Porenradius r_{eff} entscheidend. Bei einer achsensymmetrischen geschlossenen Kapillare kann der effektive Porenradius analytisch über den geometrischen Porenradius abgeleitet werden [80]. Jedoch gestaltet sich der Porenraum

einer offenporigen, hochporösen Struktur, wie es bei einer Diagnostikmembran der Fall ist, zu komplex, sodass der geometrische Porenradius für die Modellierung des Kapillardrucks unzureichend ist. Experimente [22] sowie Simulationen [3, 23] haben aufgezeigt, dass bei solchen Strukturen das Verhältnis zwischen dem geometrischen und dem effektiven Porenradius etwa bei einem Faktor von ~ 7 liegt. Dafür wurde jeweils anhand von vereinfachten Strukturen der in Gleichung 2.10 dargestellte Korrekturfaktor zur Berechnung eines effektiven Porenradius hergeleitet. Dieser Ansatz zur Berechnung eines Korrekturfaktors [3, 23] zeigte bei der Gegenüberstellung mit experimentellen Wickingverläufen eine gute Übereinstimmung hinsichtlich der Vorhersage des Wickingverhaltens auf Basis effektiver Strukturgrößen. Allerdings ist es mit dieser Methode [3, 23] nicht möglich, die Richtungsabhängigkeit des kapillaren Drucks zu berücksichtigen. Diese Limitation wird durch die im folgenden Kapitel dargestellte Methode überwunden.

Um ein umfassenderes Verständnis der strukturellen Abhängigkeiten des Wickingverhaltens in einem Lateral-Flow-Test (LFT) zu erlangen, wurde in [57] mittels eines datengetriebenen Ansatzes eine Beziehung zwischen der Struktur und dem Wickingverhalten etabliert. Dieser Ansatz beleuchtet nicht nur die Wechselwirkungen verschiedener struktureller Eigenschaften, sondern nutzt diese Erkenntnisse auch, um einen allgemeingültigen Zusammenhang zwischen dem Wickingverhalten und der Mikrostruktur zu definieren. Diese Methodik wird in der vorliegenden Arbeit verwendet, um einen Struktur-Wicking-Beziehung in Diagnostikmembranen abzuleiten. Die vorliegende Arbeit verwendet im Vergleich zu [57] einen innovativen Generierungsalgorithmus der weitere detaillierte Charakteristika realer Strukturen berücksichtigt und zudem ein um den Beitrag der Tortuosität erweitertes makroskopische Wickingmodell.

6.2 Makroskopisches Wickingmodell

Zur makroskopischen Beschreibung des Wickingverhaltens in porösen Membranen, wird der folgende Darcy-Ansatz aus der Arbeit von Nicolas Fries [33] gewählt

$$\frac{2\gamma_{FG} \cos(\theta_e)}{r_{\text{eff}}} = \rho gh + \frac{\varepsilon}{K} \eta h \dot{h} + \rho \frac{d(h\dot{h})}{dt}. \quad (6.2)$$

Dieser baut auf der in Gleichung 2.21 gezeigten 1D-Impulsbilanz zwischen der Kapillarkraft, Gravitationskraft, Reibungskraft und der Trägheitskraft auf, wobei r_{eff} den effektiven Porenradius und h die benetzte Steighöhe beschreibt. Für die Betrachtung der Flüssigkeitsausbreitung in porösen offenporigen Membranen kann der Trägheitsterm nach [3] vernachlässigt werden. Dies wird mit der Weber-Zahl begründet, die zur Beurteilung des Verhältnisses aus Trägheitskraft und Oberflächenkraft dient

$$We = \frac{\rho \dot{h}^2 r_p}{\gamma_{FG}}, \quad (6.3)$$

wobei für $We \ll 1$ die Trägheitskraft vernachlässigt werden kann [81]. Für die in dieser Arbeit verwendeten offenporigen Membranen kann ein geometrischer Porenradius r_p von $\sim 2 \mu\text{m}$ angenommen werden. Als Flüssigkeiten werden Wasser und *Porefil*® betrachtet, deren Eigenschaften Tabelle 6.1 zu entnehmen sind. Für die mittlere Wickinggeschwindigkeit \dot{h} ergibt sich ein Wert von $\sim 0,3 \text{ mm/s}$ für Wasser und $\sim 0,04 \text{ mm/s}$ für *Porefil*® [3]. Die Weber-Zahl beträgt somit für

Tabelle 6.1: Eigenschaften der in dieser Arbeit verwendeten Newtonschen Fluide Wasser und *Porefil*®.

Parameter	Wasser	<i>Porefil</i> ®
γ_{FG} in (mN/m)	72	16
μ in (mPa s)	1	2,2
ρ in (kg/m ³)	998	1800

Wasser $2,5 \cdot 10^{-9}$ und für *Porefil*® $3,6 \cdot 10^{-10}$. Die Trägheitskraft in dem Darcy-Ansatz ist dementsprechend vernachlässigbar.

Wird im Reibungsterm der Impulsbilanz aus Gleichung 6.2 wie in [82] zusätzlich die Gewundenheit des Transportpfades h_t berücksichtigt, ergibt sich folgender Zusammenhang

$$\frac{2\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)}{r_{\text{eff}}} = \rho gh + \frac{\varepsilon}{K} \eta h_t \dot{h}_t. \quad (6.4)$$

Der tatsächliche Transportpfad h_t und die Steighöhe h sind hier über die Tortuosität τ verknüpft mit

$$h_t = \tau h \quad (6.5)$$

und

$$\dot{h}_t = \tau \dot{h}. \quad (6.6)$$

Somit ergibt sich die nachfolgende Impulsgleichung, welche in dieser Arbeit zur Vorhersage des Wickingverhaltens angewendet wird

$$\frac{2\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)}{r_{\text{eff}}} = \rho gh + \frac{\varepsilon}{K} \eta h \dot{h} \tau^2. \quad (6.7)$$

Mithilfe der dimensionslosen Koeffizienten [33]

$$b = \frac{\mu}{2\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)} \frac{\varepsilon r_{\text{eff}} \tau^2}{K} \quad (6.8)$$

und

$$c = \frac{\rho g r_{\text{eff}}}{2\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)} \quad (6.9)$$

und der Gleichung 6.4 lässt sich die Geschwindigkeit der Flüssigkeitsfront als

$$\dot{h} = \frac{1}{b} \frac{1}{h} - \frac{c}{b} \quad (6.10)$$

beschreiben. Durch das Lösen dieser Differentialgleichung lässt sich die Steighöhe beziehungsweise Wickinghöhe h mithilfe der Lambert W Funktion modellieren [33]

$$h(t) = \frac{1}{c} \left[1 + W \left(-e^{-1 - \frac{c^2 t}{b}} \right) \right]. \quad (6.11)$$

Ein Umstellen der Gleichung 6.11 führt schlussendlich zur analytischen Vorhersage der Wickingzeit t in Abhängigkeit der Steighöhe h

$$t = -\frac{bh}{c} - \frac{b}{c^2} \ln(1 - ch). \quad (6.12)$$

6.3 Richtungsabhängiger effektiver Porenradius

Um den Kapillardruck in porösen Strukturen korrekt abzubilden, ist die Bestimmung des effektiven Porenradius r_{eff} aus Gleichung 6.7 essentiell. Um dies zu realisieren, wurde in Folge dieser Arbeit ein Ansatz gewählt, welcher mittels zweiphasiger Phasenfeldsimulationen eine mittlere Krümmung H der freien Grenzfläche in porösen Strukturen berechnet. Daraus wird ein effektiver Porenradius r_{eff} berechnet, der den Radius einer geschlossenen kreisförmigen Kapillare mit äquivalenter mittlerer Krümmung beschreibt

$$r_{\text{eff}} = \frac{\cos \theta}{H}. \quad (6.13)$$

Der Vorteil dieser Methode liegt darin, dass durch die Berechnung einer richtungsabhängigen mittleren Krümmung eine mögliche Anisotropie der Struktur in der Kapillarkraft (siehe Gleichung 6.7) abgebildet werden kann. Im nächsten Abschnitt werden zunächst die Grundlagen der zweiphasigen Phasenfeldsimulation erläutert. Anschließend wird die entwickelte Methode anhand vereinfachter Strukturen detailliert beschrieben und daraufhin in realen Membranstrukturen

angewendet. Abschließend werden die erzielten Ergebnisse mit experimentellen Daten gegenübergestellt.

6.3.1 Phasefeldmodellierung der Benetzung

Die Phasefeldmethode betrachtet den Übergang zwischen zwei Phasen als diffuse Grenzfläche (engl. Interface), siehe Abbildung 6.2. Die zeitliche Evolution der Phasefeldvariablen ϕ wird hierbei für jeden Zeitschritt berechnet. Diese Variable gibt die Anteile der N Phasen innerhalb eines Voxels an, wobei die Bedingung $\sum_{i=1}^N \phi_i = 1$ für jeden Voxel stets erfüllt sein muss. Das in dieser Arbeit verwendete Phasefeldmodell zur Simulation beweglicher Oberflächen basiert auf der Veröffentlichung von Nestler et al. [83] und wurde durch Marouen Ben Said im Rahmen seiner Dissertation [84] um eine energetische Benetzungsrandbedingung erweitert. Da in der vorliegenden Ausarbeitung ein zweiphasiges System untersucht wird, wird das Modell im Folgenden für ein solches erläutert. Für die Beschreibung von N Phasen ($N \geq 2$) wird auf die Literatur [84] verwiesen.

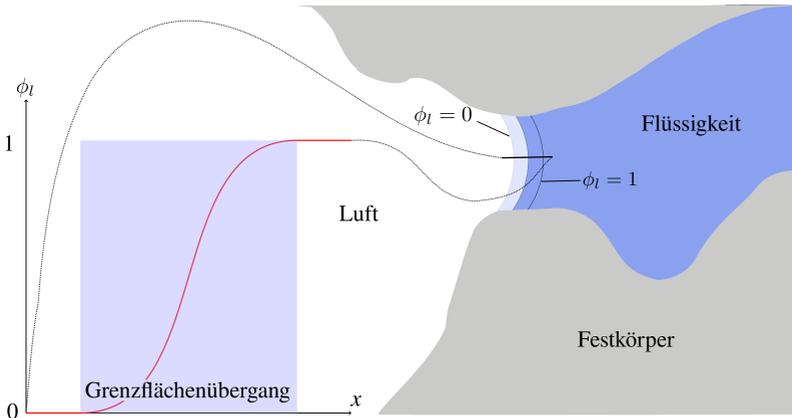


Abbildung 6.2: Schematische Darstellung der Phasefeldmethode mit einem teilweise benetzten Festkörper auf der rechten Seite des Bildes und der Darstellung des diffusen Grenzflächenübergangs des Phasefeldparameters ϕ_l auf der linken Seite.

Zweiphasiges Allen-Cahn-Phasenfeldmodell

Für ein Gebiet $\Omega \subset \mathbb{R}^d$ mit der Dimension $d \in \{1, 2, 3\}$, bestehend aus zwei Phasen α und β sowie den Bedingungen $\phi = \phi_\alpha$ und $\phi_\beta = 1 - \phi$, lässt sich die Grenzflächenenergie des Systems mittels eines Ginzburg-Landau-Typ Funktionals der folgenden Form beschreiben

$$\mathcal{F}(\phi) = \int_{\Omega} \varepsilon \gamma_{\alpha\beta} |\nabla \phi|^2 + \frac{1}{\varepsilon} w(\phi) dV. \quad (6.14)$$

Hierbei korreliert der Parameter ε mit der Breite des diffusen Grenzflächenübergangs, wobei $\gamma_{\alpha\beta}$ für die Grenzflächenspannung der $\alpha\beta$ Grenzfläche steht. Der erste Term in Gleichung 6.14 bewirkt eine Verbreiterung des Grenzflächenübergangs, während $w(\phi)$ seine Verringerung zur Folge hat. Basierend auf den Untersuchungen des Einflusses von ε in der Dissertation von Patrick Altschuh [3] wird für alle nachfolgenden Untersuchungen $\varepsilon = 4$ festgelegt.

Mithilfe der Gleichung 6.14 und einem in [84] ausführlich beschriebenen Variationsansatzes lässt sich folgende zeitabhängige Evolutionsgleichung mit dem kinetischen Koeffizienten τ als

$$\tau \varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} = \varepsilon \gamma_{\alpha\beta} \nabla \phi - \frac{1}{\varepsilon} \frac{16 \gamma_{\alpha\beta}}{\pi^2} \frac{(1 - 2\phi)}{2} \quad (6.15)$$

darstellen. Diese Gleichung beschreibt die Evolution des Phasenfeldes ϕ , welche die Energie des Systems minimiert, sodass eine Flüssigkeit im Gleichgewichtszustand die energetisch günstigste Form annimmt. Bei der Herleitung der Evolutionsgleichung 6.15 wurde eine partielle Integration durchgeführt, der Gaußsche Integralsatz verwendet und $\nabla \phi \cdot \mathbf{n} = 0$ gesetzt, wobei \mathbf{n} der Einheitsnormalenvektor des Festkörpers ist. Da diese Evolutionsgleichung erstmals in [85] von Allen und Cahn vorgestellt wurde, wird sie allgemein als Allen-Cahn-Gleichung bezeichnet.

Im nächsten Abschnitt wird die Erweiterung des Allen-Cahn-Modells um eine aus [84] stammende Randbedingung, die indirekt die Festlegung eines Kontaktwinkels am Rand des Gebiets Ω ermöglicht, beschrieben.

Energetische Benetzungsrandbedingung

Um auf dem Rand Ω_s des Gebiets Ω einen definierten Kontaktwinkel vorzugeben, wird das Energiefunktional in Gleichung 6.14 um folgenden Energiebeitrag

$$\int_{\partial\Omega_s} f_w(\phi) dS \quad (6.16)$$

mit

$$f_w(\phi) = (\gamma_{FS} - \gamma_{GS})h(\phi) + \gamma_{GS} \quad (6.17)$$

erweitert. γ_{FS} entspricht der Fluid-Substrat-Oberflächenspannung und γ_{GS} der Gas-Substrat-Oberflächenspannung. Die Funktion $h(\phi)$ interpoliert den Phasenfeldwert im Intervall $[0,1]$. Dadurch ergibt sich das neu definierte Ginzburg-Landau-Typ Funktional folgender Form

$$\mathcal{F}(\phi) = \int_{\Omega} \varepsilon \gamma_{\alpha\beta} |\nabla\phi|^2 + \frac{1}{\varepsilon} w(\phi) dV + \int_{\partial\Omega_s} f_w(\phi) dS. \quad (6.18)$$

Somit gilt im Gebiet Ω die Evolutionsgleichung 6.15 mit der Benetzungsrandbedingung

$$-2\varepsilon\gamma_{FG}\nabla\phi \cdot \mathbf{n} + (\gamma_{GS} - \gamma_{FS})\frac{\partial h}{\partial\phi}(\phi) = 0, \quad \text{auf } \partial\Omega_s, \quad (6.19)$$

wobei \mathbf{n} den Einheitsnormalenvektor der Substratoberfläche bezeichnet.

Die Arbeit von Ben Said [84] sowie [86] zeigt auf, dass sobald sich das System im Gleichgewichtszustand befindet ($\partial\phi/\partial t = 0$), die Benetzungsrandbedingung aus Gleichung 6.19 den statischen Kontaktwinkel θ_s auf dem Gebietsrand Ω_s vorschreibt und Young's Gesetz (vgl. Kapitel 2.2.3) erfüllt ist

$$\cos\theta_s = \frac{\gamma_{GS} - \gamma_{FS}}{\gamma_{FG}}. \quad (6.20)$$

Die Übergabe der Differenz der Grenzflächenenergien $\gamma_{GS} - \gamma_{FS}$ und der Oberflächenspannung γ_{FG} unter Anwendung der Gleichung 6.19 ermöglicht somit eine indirekte Festlegung eines statischen Kontaktwinkels θ_S . Dadurch ist eine direkte Variation des Kontaktwinkels mit zeitgleicher Variation der Oberflächenspannung in dieser Modellierung nicht möglich.

Wenn zusätzlich die Gravitation berücksichtigt wird, ändert sich das Ginzburg-Landau-Typ Funktional aus Gleichung 6.18 wie folgt

$$\mathcal{F}(\phi) = \int_{\Omega} \varepsilon \gamma_{\alpha\beta} |\nabla\phi|^2 + \frac{1}{\varepsilon} w(\phi) + f_G(\phi) dV + \int_{\partial\Omega_s} f_w(\phi) dS. \quad (6.21)$$

Der Energiebeitrag $f_G(\phi)$ entspricht der Lageenergie

$$f_G(\phi) = \rho \mathbf{g} \mathbf{x} h(\phi). \quad (6.22)$$

ρ repräsentiert dabei die Dichte der Phase, \mathbf{g} den Gravitationsvektor, \mathbf{x} die Lage der Grenzfläche und $h(\phi)$ die Interpolationsfunktion aus Gleichung 6.17.

Im Rahmen dieser Arbeit wird mithilfe der Gleichung 6.20 ein fester Kontaktwinkel für die Tropfenausbreitung in einer Membran definiert. Hierbei wird γ_{FG} als entdimensionalisierter Wert für die FG-Oberflächenspannung vorgegeben und mithilfe der Differenz von $\gamma_{GS} - \gamma_{FS}$ der jeweilig gewünschte Kontaktwinkel festgelegt.

Mittlere Krümmung der freien Oberfläche

Die Simulationsumgebung PACE3D bietet die Möglichkeit die mittlere Krümmung H der freien Oberfläche zwischen der Gas- und der Fluidphase zu berechnen. Dies geschieht auf dem zugrundeliegenden Phasenfeld $\phi(\mathbf{x})$ über die Berechnung des folgenden Zusammenhangs [3]

$$H = \frac{1}{N_I} \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \sum_{k=1}^{N_z} \frac{1}{2} \nabla \frac{\nabla\phi(\mathbf{x})}{|\nabla\phi(\mathbf{x})|} \quad \text{mit } \mathbf{x} \in \Omega_{FG}. \quad (6.23)$$

Dabei bezeichnet N_I die Anzahl aller Voxel im Grenzflächenbereich Ω_{FG} zwischen der Gas- und der Fluidphase. Die Berechnungsmethode wird im folgenden Abschnitt anhand einer analytischen Berechnung der mittleren Krümmung in Kapillaren validiert.

Validierung der Phasenfeldmethode

Nachfolgend wird das beschriebene Phasenfeldmodell, die dazugehörige Benetzungsrandbedingung und die Berechnung der mittleren Krümmung H validiert. Dazu wird der Wasseranstieg in einer kreisrunden Kapillare simuliert und mit analytischen Lösungen gegenübergestellt. Zur analytischen Berechnung der Steighöhe h_{an} unter Berücksichtigung der Gravitation g wird [80]

$$h_{an} = 2 \frac{\gamma \cos \theta}{(\rho_W - \rho_L)gr} \quad (6.24)$$

angenommen. γ beschreibt hier die Oberflächenspannung, θ den Kontaktwinkel zwischen dem Substrat und der freien Oberfläche, ρ_W die Dichte von Wasser, ρ_L die Dichte von Luft und g die Normfallbeschleunigung. Die mittlere Krümmung H_{an} lässt sich mit den Hauptkrümmungsradien R_1 und R_2 und dem Kontaktwinkel θ wie folgt berechnen

$$H_{an} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = \frac{\cos \theta}{r}, \quad (6.25)$$

wobei für eine kreisförmige Kapillare $R_1 = R_2$ gilt.

Um einerseits das in diesem Abschnitt beschriebene Phasenfeldmodell mit energetischer Randbedingung zu validieren und andererseits den Einfluss der Diskretisierung zu untersuchen – also wie fein das Gitter sein muss, um den Porenradius im diskreten Raum aufzulösen –, wird der Kapillaranstieg in einer kreisförmigen Kapillare simuliert. Der dimensionsbehaftete Radius der Kapillare wird konstant bei 1 mm gehalten, während der diskretisierte Radius zwischen 3 und 20 Zellen variiert. Tabelle 6.2 beschreibt die gewählten Geometrie- und Phasenparameter. Der Kontaktwinkel θ wird von 40° bis 80° variiert.

Tabelle 6.2: Geometrie- und Phasenparameter der Simulation des Kapillaranstiegs von Wasser in einer Kapillare unter Berücksichtigung der Gravitation.

Oberflächenspannung γ	72 mN/m
Normfallbeschleunigung g	9,81 m/s ³
Dichte ρ_L	1 kg/m ³
Dichte ρ_W	998 kg/m ³
Kapillarradius r	1 mm

Die Qualität der Simulationen wird durch die relative Abweichung

$$f_h = \frac{h_{\text{sim}} - h_{\text{an}}}{h_{\text{an}}} \cdot 100\% \quad (6.26)$$

beurteilt, wobei zur Berechnung der simulativen Steighöhe h_{sim} die aus [33] stammende Beziehung

$$h_{\text{sim}} = h_{\text{max}} - h_t = h_{\text{max}} - \frac{1}{6} h_m \left(3 + \frac{h_m^2}{r^2} \right) \quad (6.27)$$

verwendet wird. Wie in Abbildung 6.3b) veranschaulicht, beschreibt h_m die Meniskushöhe der freien Oberfläche im stationären Zustand und h_t den Abstand

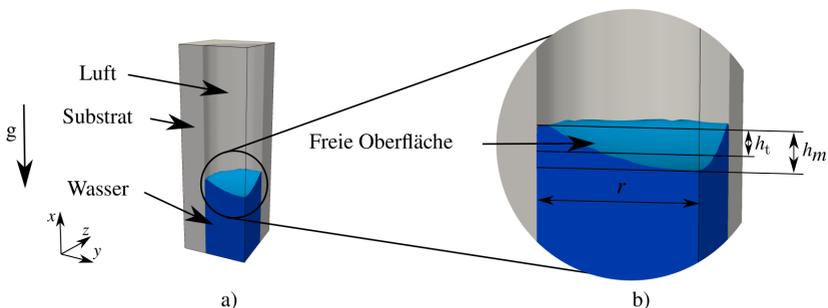


Abbildung 6.3: In a) wird der Ausschnitt einer Kapillare mit Kapillaranstieg gezeigt, wobei in b) die Meniskushöhe h_m der freien Oberfläche und der Kapillarradius r veranschaulicht werden.

der effektiven Volumenhöhe h zur maximalen Meniskushöhe h_{max} . Die effektive Volumenhöhe h beschreibt die Höhe, welche sich bei einer Kapillare mit dem Radius r und dem Gesamtvolumen mit einer flachen Oberfläche ergibt. Abbildung 6.4a) stellt die relative Abweichung zwischen den simulierten und analytisch ermittelten Steighöhen dar. Es zeigt sich, dass für alle untersuchten Kontaktwinkel die relative Abweichung stets kleiner als 5 % ist, sobald der Radius im diskreten Raum mit mehr als 13 Zellen abgebildet wird. Eine Abweichung von unter 5 % wird als akzeptabel angesehen. Das in dieser Arbeit verwendete Phasenfeldmodell und die dazugehörige energetische Benetzungsrandbedingung wird daher als validiert betrachtet.

Zur Validierung der vorgestellten Methode zur Berechnung der mittleren Krümmung einer freien Oberfläche wird in Abbildung 6.4b) die relative Abweichung f_H der simulativ und analytisch ermittelten mittleren Krümmung abgebildet. Auch hier zeigt sich, dass ab einer Auflösung des Kapillarradius von 13 Zellen valide Ergebnisse vorliegen.

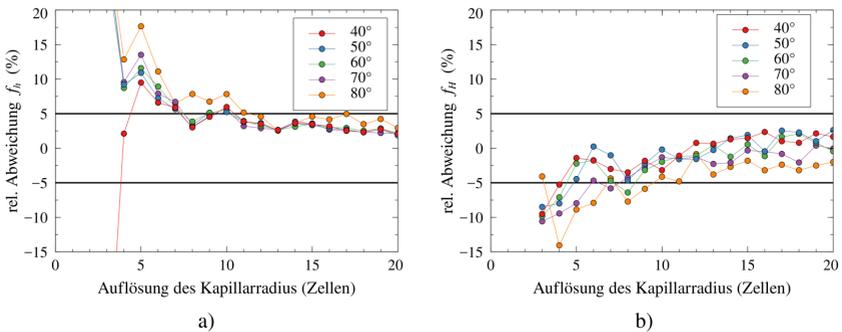


Abbildung 6.4: In a) wird die relative Abweichung f_h zwischen den simulierten und analytisch ermittelten Steighöhen dargestellt. Zur Validierung der in Abschnitt 6.3.1 vorgestellten Methode zur Berechnung der mittleren Krümmung wird in b) die relative Abweichung dieser Methode zur analytischen Lösung dargestellt. Die Berechnung von f_h und f_H erfolgt analog zu Gleichung 6.26.

6.3.2 Modellsetup und Validierung in vereinfachten Strukturen

Zur Modellierung des Kapillardrucks wird ein quantitativ richtungsabhängiger effektiver Porenradius r_{eff} benötigt. Für dessen Ermittlung wird die Benetzung einer porösen Struktur aus einem infiniten Flüssigkeitsreservoir simuliert. Dazu wird das in Abschnitt 6.3.1 vorgestellte zweiphasige Allen-Cahn-Phasenfeldmodell mit einer energetischen Benetzungsrandbedingung und ohne Gravitationseinfluss angewendet. Mittels einer Neumann-Randbedingung und einer initialen Teilfüllung (siehe Abbildung 6.5a)) kann eine komplette Benetzung der betrachteten Struktur in die Benetzungsrichtung x abgebildet werden. Die treibende Kraft zur Benetzung der Struktur basiert auf der Minimierung der freien Oberfläche in Gleichung 6.18. Die Simulation berechnet in konstanten Zeitschritten die mittlere Krümmung der freien Oberfläche $H_{x,i}$ zu jedem Zeitpunkt i . Sobald die Flüssigkeit nach n Zeitschritten 90 % der Strukturlänge l_x benetzt hat, wird eine gemittelte mittlere Krümmung H_x berechnet

$$H_x = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n H_{x,i}. \quad (6.28)$$

Dies wird in Abbildung 6.5b) veranschaulicht. Abschließend kann mithilfe von Gleichung 6.13 der richtungsabhängige effektive Porenradius $r_{\text{eff}, x}$ ermittelt werden. Durch das Ändern der initialen Randbedingungen, kann H_y und H_z und somit $r_{\text{eff}, y}$ und $r_{\text{eff}, z}$ berechnet werden.

Die Validierung des hier vorgestellten Ansatzes zur Bestimmung eines richtungsabhängigen effektiven Porenradius, erfolgt durch die Simulation des Wasseranstiegs in einer vereinfachten Zylinderstruktur in x -Richtung, unter Einwirkung der Gravitation (siehe Abbildung 6.5a)). Die Simulationsergebnisse werden anschließend mit der analytischen Lösung für die Anstiegshöhe im Gleichgewicht h_{GG} nach Jurin [80] wie folgt berechnet

$$h_{\text{GG}} = \frac{2\gamma_{\text{FG}} \cos(\theta)}{\rho g r_{\text{eff}, x}}. \quad (6.29)$$

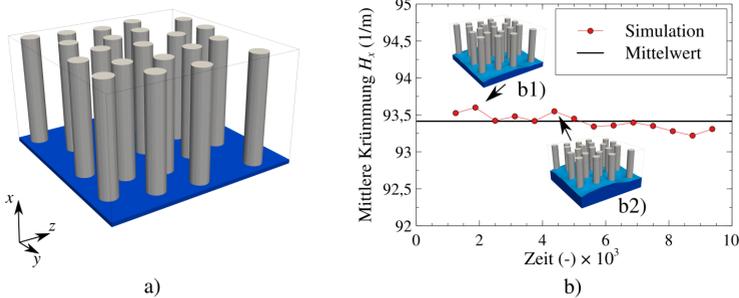


Abbildung 6.5: In a) wird die initiale Teilfüllung zur simulativen Benetzung der Struktur abgebildet, welche mittels einer Neumann-Randbedingung realisiert wird. Abbildung b) zeigt exemplarisch die Messung der mittleren Krümmung $H_{x,i}$ der freien Oberfläche sowie den nach Gleichung 6.28 ermittelten Mittelwert der Krümmung H_x . Weiterhin wird in b1) und b2) die freie Oberfläche der Flüssigkeit zu zwei unterschiedlichen Zeitpunkten abgebildet.

Das Simulationsgebiet hat eine Größe von $15\text{ mm} \times 26\text{ mm} \times 26\text{ mm}$ mit einer räumlichen Auflösung von Δx , Δy und Δz von $50\text{ }\mu\text{m}/\text{Zelle}$. Als Randbedingung wird in x -Richtung jeweils eine Neumann und an den verbleibenden Rändern eine periodische Randbedingung definiert. Alle Zylinder haben denselben Durchmesser. Insgesamt werden sechs Strukturen untersucht, wobei der Radius der Zylinder von $0,5\text{ mm}$ bis $1,75\text{ mm}$ variiert. Der Kontaktwinkel beträgt gemäß Zhdanov et al. [87] $\theta = 50^\circ$. Tabelle 6.3 fasst alle relevanten Simulationsparameter zur Durchführung der Validierungsstudie zusammen. Abbildung 6.6a) zeigt die Be-

Tabelle 6.3: Alle relevanten Simulationsparameter, welche in der Validierungsstudie zur Berechnung eines effektiven Porenradius verwendet wurden.

Parameter	physikalisch	numerisch
γ_{FG}	72 mN/m	$1,0$
θ	50°	-
Δt	$5,208\text{ }\mu\text{s}$	$0,125$
ε	-	$4,0$
$\Delta x, \Delta y, \Delta z$	$50\text{ }\mu\text{m}$	$1,0$

netzung im Gleichgewichtszustand einer Zylinderstruktur mit einem Zylinderradius von 1,25 mm. Die Gegenüberstellung der nach Gleichung 6.29 berechneten analytischen Lösung der Steighöhe h_{GG} und die simulativ ermittelte Steighöhe h_{Sim} sind in Abbildung 6.6b) dargestellt. Der notwendige effektive Porenradius r_{eff} (vgl. Gleichung 6.29) wird mit der zuvor beschriebenen Vorgehensweise berechnet. Die Vorhersage und die Simulation zeigen eine gute Übereinstimmung mit einer maximalen Abweichung von 5,7 %.

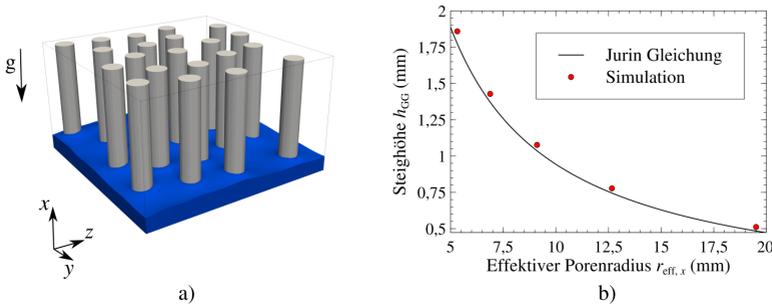


Abbildung 6.6: Abbildung a) zeigt die Benetzung im Gleichgewichtszustand einer Zylinderstruktur mit einem Zylinderradius von 1,25 mm unter Berücksichtigung der Gravitation. In b) wird die Gegenüberstellung der nach Jurin [80] analytisch ermittelten und der simulativ berechneten Steighöhe über dem effektiven Porenradius $r_{eff,x}$ gezeigt. Die Abweichung beträgt maximal 5,7 %.

6.3.3 Validierung mit realen Membranstrukturen

Im Folgenden wird das experimentelle Wicking den Vorhersagen des Modells aus Abschnitt 6.2 gegenübergestellt. Dies dient der Validierung des Modells, seiner Erweiterung um die Tortuosität sowie der Berechnung des richtungsabhängigen effektiven Porenradius. Es werden insgesamt vier unterschiedliche Membranproben und die dazugehörigen experimentellen Datensätze herangezogen, von denen drei aus der Dissertation von Patrick Altschuh [3] stammen. Die Proben A und B sind vom gleichen Membrantyp, während C und D jeweils einem modifizierten Membrantyp entsprechen. Alle werden in der medizinischen Diagnostik

eingesetzt. Um eine Beeinflussung der Benetzungseigenschaften γ und θ durch sich während des Wickingprozesses lösende Tenside zu verhindern, wird als Fluid *Porefil*® mit den in Tabelle 6.1 aufgeführten Eigenschaften verwendet. Die Wickingexperimente wurden mit dem in Kapitel 4.2.2 vorgestellten Steigzeitmessgerät realisiert. Tabelle 6.4 führt die Struktureigenschaften der realen Membranproben auf. Diese werden mittels der Extraktionsmethoden aus Kapitel 4 und Abschnitt 6.3 ermittelt. Dabei basieren die digitalen Zwillinge der Proben A, B und C auf hochauflösenden Computertomografie-Messungen und der digitale Zwilling von Probe D auf der Konfokalen Laser-Scanning Mikroskopie (vgl. Abschnitt 3.1).

Tabelle 6.4: Auflistung der relevanten Strukturparameter: Porosität ε , mittlerer geometrischer Porenradius r_p , mittlerer Stegradius r_s sowie der richtungsabhängigen Eigenschaften Permeabilität K , Tortuosität τ und effektiver Porenradius r_{eff} in Produktionsrichtung (PR) und quer zur Produktionsrichtung (QR). Die Proben A, B und C stammen aus [3].

Strukturparameter	Probe A	Probe B	Probe C	Probe D
ε in (%)	82,40	82,02	88,90	89,86
r_p in (μm)	1,73	1,67	2,16	2,36
r_s in (μm)	0,72	0,67	0,64	0,69
K_{PR} in (m^2) $\times 10^{-13}$	7,78	6,86	16,83	23,00
K_{QR} in (m^2) $\times 10^{-13}$	7,30	6,45	15,54	21,71
τ_{PR} (-)	1,198	1,211	1,119	1,119
τ_{QR} (-)	1,214	1,214	1,121	1,128
$r_{\text{eff, PR}}$ in (μm)	10,45	9,57	16,53	21,62
$r_{\text{eff, QR}}$ in (μm)	11,09	9,80	17,76	23,67

Zunächst wird das Wickingverhalten entlang der Produktionsrichtung für die Proben A und B untersucht. Anschließend erfolgt die Analyse des anisotropen Wickingverhaltens in die beiden lateralen Richtungen für die Proben C und D.

Abbildungen 6.7a) und 6.7b) stellen sowohl die experimentell ermittelten Ergebnisse als auch verschiedene Modellierungsansätze des zeitlichen Verlaufs des Wickingverhaltens für die Proben A und B dar. Insgesamt liegen in [3] drei experimentell ermittelte Wickingkurven für Probe A, B und C vor. Da diese jedoch eine sehr gute Übereinstimmung haben, wird für eine bessere Übersichtlichkeit lediglich ein Experiment aufgezeigt. Um die Notwendigkeit eines effektiven Porenradius zur Modellierung der treibenden Kapillarkraft in Gleichung 6.7 zu verdeutlichen, wurde das Wickingverhalten mit dem mittleren geometrischen Porenradius r_p modelliert. Es zeigt sich für beide Proben, dass die modellierte Wickingzeit deutlich unterschätzt wird, da die Kapillarkraft mit dem geometrischen Porenradius deutlich überschätzt wird. Dies lässt sich auf den offenporigen und hochporösen Charakter der Membran zurückzuführen. Weiterhin wird die Wickingvorhersage mit einem effektiven Kapillarradius r_c basierend auf dem Korrekturfaktor $F(r_s, r_p)$ aus Gleichung 2.11 modelliert. Dieser Ansatz bietet, wie schon in [3] gezeigt, eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Eine Anisotropie der Kapillarkraft kann damit jedoch nicht abgebildet werden. Dies kann mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Ansatz zur

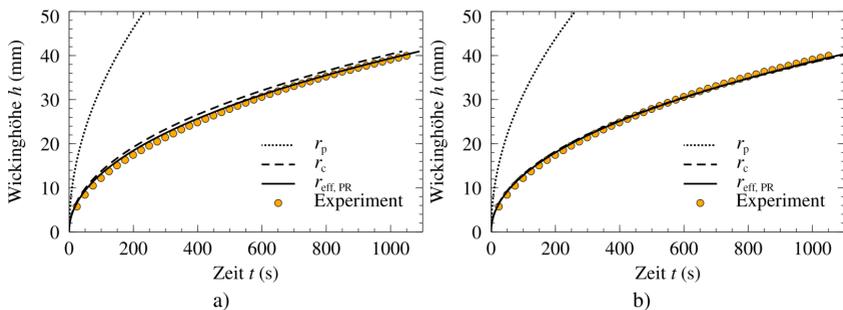


Abbildung 6.7: Gegenüberstellung der Wickingexperimente und der unterschiedlichen Modellierungsansätze zur Vorhersage des Wickingverlaufs der in a) gezeigten Probe A und in b) abgebildeten Probe B mit *Porefil*® als Wickingfluid. Der Kapillardruck wurde einerseits mit dem mittleren geometrischen Porenradius r_p , dem effektiven Kapillarradius r_c und dem in dieser Arbeit vorgestellten Ansatz (siehe Abschnitt 6.3) zur Bestimmung eines richtungsabhängigen effektiven Porenradius $r_{\text{eff, PR}}$ abgebildet. Dabei wurde aufgrund fehlender Experimente für Probe A und B lediglich das Wickingverhalten in Produktionsrichtung untersucht.

Berechnung eines effektiven Porenradius r_{eff} realisiert werden. Für Probe A und B zeigt sich, dass der experimentell ermittelte Wickingverlauf in Produktionsrichtung mit dem makroskopischen Modellierungsansatz aus Gleichung 6.7 und dem Ansatz zur Berechnung eines effektiven Porenradius $r_{\text{eff, PR}}$ in Produktionsrichtung sehr gut übereinstimmt. An dieser Stelle sei erneut angemerkt, dass die Wickingvorhersage ausschließlich auf effektiven Strukturparametern basiert und ohne jegliches Anpassen an experimentelle Werte erfolgt. Zur Überprüfung des anisotropen Modellierungsansatzes wurden in Folge dieser Arbeit für Probe C zusätzlich zu den aus [3] stammenden Wickingexperimenten in Produktionsrichtung zwei weitere Experimente quer zur Produktionsrichtung durchgeführt. Dies wird in Abbildung 6.8a) veranschaulicht. Es ist einerseits erkennbar, dass die Methode zur Durchführung der Wickingexperimente mit dem in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Vorgehen sehr gut reproduzierbar ist. Andererseits zeigt sich ein klarer Unterschied zwischen den beiden lateralen Richtungen. Ein verlangsamter Benetzungsprozess quer zur Produktionsrichtung wird dabei ersichtlich, wobei bei einer Wickinghöhe von 35 mm eine mittlere Wickingzeit von $t_{W, PR} = 742 \text{ s}$ (SD=12) und $t_{W, QR} = 976 \text{ s}$ (SD=18) mit der zugehörigen Standardabweichung (SD) vorliegt. Für die Probe D ist in Abbildung 6.8b) ein vergleichbares Verhalten erkennbar, wobei hier bei einer Wickinghöhe von 35 mm eine mittlere Wickingzeit von $t_{W, PR} = 640 \text{ s}$ (SD=7) und $t_{W, QR} = 829 \text{ s}$ (SD=17)

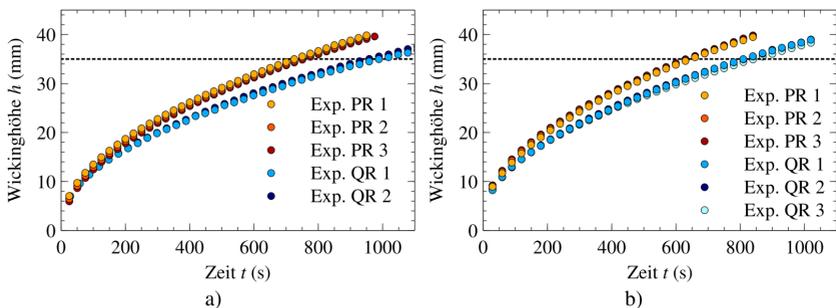


Abbildung 6.8: In Abbildung a) werden die Wickingexperimente für Probe C in Produktionsrichtung (PR) sowie quer zur Produktionsrichtung (QR) gezeigt. Als benetzendes Fluid wurde *Porefil*® verwendet. In b) wurden dieselben Untersuchungen für Probe D durchgeführt.

ermittelt wurde. In den Abbildungen 6.9a) und b) werden die Wickingvorhersagen basierend auf Gleichung 6.7 mit Wickingexperimenten in beide laterale Richtungen gegenübergestellt. Aufgrund der sehr guten Reproduzierbarkeit der experimentellen Ergebnisse, wird zur besseren Übersichtlichkeit jeweils nur ein Experiment gezeigt.

In Abbildung 6.9a) ist zu sehen, dass die Modellierung des Wickingverhaltens von Probe C in Produktionsrichtung überschätzt wird. Bei einer Wickinghöhe von 35 mm wird die Wickingzeit um 20,41 % zu schnell vorhergesagt. Quer zur Produktionsrichtung wird die Wickingzeit sogar um 27,88 % unterschätzt. Trotzdem zeigt die Modellierung einen klaren Unterschied zwischen den lateralen Richtungen, welcher sich durch die richtungsabhängigen Strukturparameter der Permeabilität, der Tortuosität und des effektiven Porenradius ergibt. Die Diskrepanz zwischen Vorhersage und Experiment könnten auf die räumliche Lage der Proben zurückzuführen sein. Hierbei können Inhomogenitäten in der Porenstruktur entlang der Produktionsmaschine auftreten. Diese Inhomogenitäten könnten wiederum zu Abweichungen zwischen dem analysierten digitalen Zwilling und den experimentell untersuchten Proben führen. Bei den verbleibenden drei Proben wurde dies bei der Auswahl der Probenposition berücksichtigt, indem die Proben zur Extraktion der Struktureigenschaften und die Proben zur experimentellen Untersuchung lokal nah beieinander liegen.

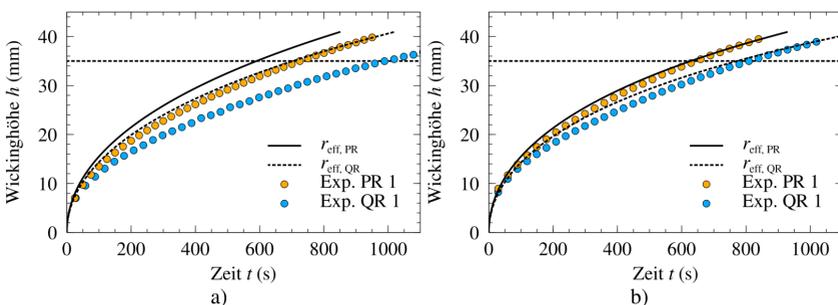


Abbildung 6.9: In Abbildung a) werden die Wickingexperimente mit *Porefil*® für Probe C in Produktionsrichtung sowie quer zur Produktionsrichtung mit den Wickingvorhersagen basierend auf Gleichung 6.7 gegenübergestellt. In b) ist dasselbe für Probe D dargestellt.

Bei der Probe D ist dagegen, wie in Abbildung 6.9b) gezeigt, eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den Wickingvorhersagen und den experimentellen Ergebnissen erkennbar. Der Unterschied des Wickingverhaltens wird in die lateralen Richtungen gut abgebildet, wobei die Wickingzeit bei einer Wickinghöhe von 35 mm in Produktionsrichtung um 1,80 % überschätzt wird und quer zur Produktionsrichtung um 6,81 % abweicht. Die Tatsache, dass das anisotrope Wickingverhalten erfolgreich durch die richtungsabhängigen Strukturparameter abgebildet werden kann, legt nahe, dass die strukturelle Anisotropie dafür verantwortlich ist. Des Weiteren ist die strukturelle Anisotropie auf die Ausrichtung der Membranstruktur entlang der Produktionsrichtung zurückzuführen, welche durch den Produktionsprozess (vgl. Abschnitt 2.1.2) entsteht.

Abschließend kann mit den in diesem Abschnitt gezeigten Vergleichen von Wickingvorhersagen und Wickingexperimenten der Modellierungsansatz aus Gleichung 6.7 und die Berechnung eines richtungsabhängigen effektiven Porenradius als validiert angesehen werden.

6.4 Analyse der Benetzungseigenschaften

Um der hydrophoben Eigenschaft von CN-Membranen entgegenzuwirken und eine gleichmäßige Benetzung zu ermöglichen, werden die Diagnostikmembranen mit Tensid-basierten Netzmitteln behandelt, wodurch die Oberflächenspannung herabgesetzt wird. Dies kann während des Produktionsprozesses entweder durch Zugabe in die Gießlösung oder durch nachfolgendes Eintauchen in ein Netzmittelbad realisiert werden. Letzteres wird als Imprägnierung bezeichnet, wobei davon ausgegangen wird, dass sich die Tenside auf der intrinsischen Membranoberfläche befinden. Bei der Verwendung von Wasser als Wickingflüssigkeit ist bei dem Benetzungsprozess mit einer Interaktion zwischen den Tensiden und der freien Oberfläche zu rechnen. Die Tenside können sich aufgrund ihres hydrophoben Molekülanteils an der freien Flüssigkeitsoberfläche anreichern, was wiederum zu einer Herabsetzung der Oberflächenspannung führt. Dieser Prozess wird als dynamische Beeinflussung der Benetzungseigenschaften bezeichnet und

kann ebenfalls durch Netzmittelzugabe in die Wickingflüssigkeit herbeigeführt werden [3]. Um den Einfluss einer solchen Netzmittelbehandlung auf die Benetzung zu untersuchen, wurden einige Voruntersuchungen durchgeführt.

In [88] wird der Einfluss der Netzmittelkonzentration auf den Wickingprozess mit Wasser untersucht. Bei porösen CN-Membranen hat sich gezeigt, dass unterhalb eines kritischen Porenradius der Kapillarprozess unbeeinflusst von einer Zugabe von Tensiden bleibt. Für die Membranproben A, B und C wurde in [3] experimentell gezeigt, dass dieser kritische Porenradius nicht unterschritten wird und die Tensidzugabe einen Einfluss auf das Wickingverhalten besitzt. Obwohl die Membranprobe D nach Tabelle 6.4 einen kleineren geometrischen Porenradius r_p als die zuvor genannten Proben aufweist, wird in dieser Arbeit ebenfalls experimentell untersucht, ob eine Zugabe von Tensiden das Wickingverhalten dieser CN-Membran beeinflusst. Daher wird für diese Probe das Wickingverhalten in Produktionsrichtung und quer dazu untersucht und das sowohl mit als auch ohne Imprägnierung. Als Wickingflüssigkeit wurde destilliertes Wasser mit den in Tabelle 6.1 gezeigten Eigenschaften verwendet. Alle Wickingexperimente wurden mit dem in Kapitel 4.2.2 vorgestellten Steigzeitmessgerät durchgeführt, wobei für jede Untersuchung drei Experimente realisiert wurden. Die Wickingverläufe für die Membranprobe D ohne Imprägnierung sind in Abbildung 6.10a) und die mit Imprägnierung in 6.10b) abgebildet. Hierbei ist einerseits deutlich erkennbar, dass die Experimente reproduzierbar sind und dass, wie auch bei den Untersuchungen mit *Porefil*®, sowohl mit als auch ohne Imprägnierung ein verlangsamtes Wickingverhalten quer zur Produktionsrichtung auftritt. Weiterhin zeigt sich deutlich, dass eine Imprägnierung das Wickingverhalten beschleunigt. Für eine Wickinghöhe von 40 mm ändert sich die gemittelte Wickingzeit in Produktionsrichtung durch die Imprägnierung von 98,69 s auf 71,93 s und quer zur Produktionsrichtung von 126,14 s auf 96,64 s. Somit konnte experimentell nachgewiesen werden, dass der kritische Porenradius nicht unterschritten ist und eine Tensidzugabe einen erheblichen Einfluss auf das Wickingverhalten hat. Für die folgenden Untersuchungen wird das Wickingverhalten mit Imprägnierung genauer betrachtet, da dies dem realen Anwendungsfall in medizinischen Schnelltests entspricht. Dazu wird eine neue Herangehensweise vorgestellt, die es ermöglicht, gemittel-

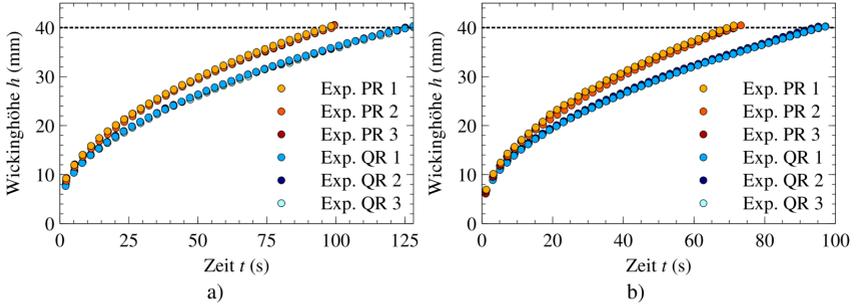


Abbildung 6.10: In Abbildung a) werden die Wickingexperimente für Probe D in Produktionsrichtung sowie quer zur Produktionsrichtung ohne eine Imprägnierung gezeigt. In b) wurden dieselben Untersuchungen durchgeführt, wobei hier die Membranprobe eine Imprägnierung mit Tensiden erfahren hat. Für alle Experimente wurde als Wickingflüssigkeit destilliertes Wasser mit den in Tabelle 6.1 gezeigten Eigenschaften verwendet.

te Benetzungseigenschaften für das Wickingverhalten von Wasser für eine bestimmte CN-Membran zu ermitteln. Hierbei wird der eigentlich dynamische Benetzungsprozess vereinfacht als konstant mit einer gemittelten Oberflächenspannung $\bar{\gamma}_{FG}$ und einem gemittelten Kontaktwinkel $\bar{\theta}$ angenommen.

Zur Bestimmung der gemittelten Benetzungseigenschaften für die Membranprobe D werden die experimentell ermittelten Wickingzeiten in Produktionsrichtung $t_{W,PR} = 71,93$ s und quer zur Produktionsrichtung $t_{W,QR} = 96,64$ s bei einer Wickinghöhe von 40 mm verwendet. Weiterhin werden die effektiven Strukturparameter aus Tabelle 6.4 und das makroskopische Modell aus Gleichung 6.12 herangezogen. In diesem Modell werden die Benetzungseigenschaften Oberflächenspannung γ_{FG} und der Kontaktwinkel θ als gemittelte Variablen definiert, sodass sich eine Funktion $t_W(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta})$ ergibt. Damit kann eine relative Abweichung $\delta t_W(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta})$ der projizierten Wickingzeit $t_W(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta})$ und der experimentell ermittelten Wickingzeit t_W wie folgt berechnet werden

$$\delta t_W(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta}) = \frac{|t_W(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta}) - t_W|}{t_W} \cdot 100\%. \quad (6.30)$$

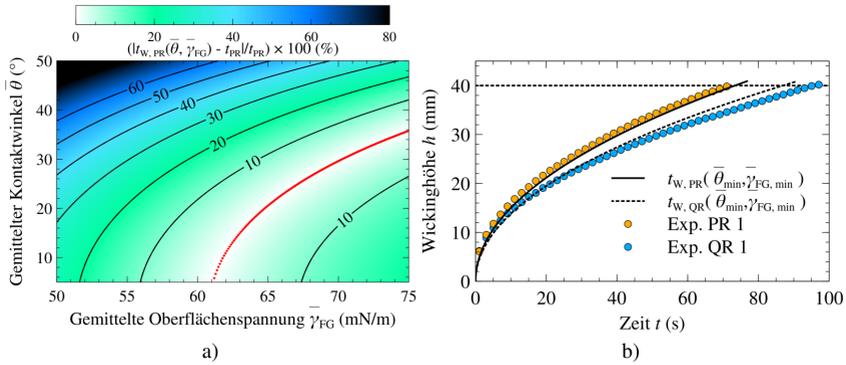


Abbildung 6.11: In a) wird die relative Abweichung zwischen der projizierten Wickingzeit $t_{W, PR}(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta})$ und der experimentell ermittelten Wickingzeit t_{PR} in Abhängigkeit von $\bar{\gamma}_{FG}$ und $\bar{\theta}$ als Konturdiagramm dargestellt. Dabei wird das Wicking bei einer Wickinghöhe von 40 mm für die Membranprobe D in Produktionsrichtung betrachtet. Als Wickingflüssigkeit wurde destilliertes Wasser mit den in Tabelle 6.1 gezeigten Eigenschaften verwendet. Die in rot hervorgehobene Isolinie zeigt die Kombinationen aus $\bar{\gamma}_{FG}$ und $\bar{\theta}$, bei denen die Vorhersage mit dem Experiment übereinstimmt. In b) wird das Wickingverhalten für die Probe D mit den nach der Methode aus Abschnitt 6.4 ermittelten Benetzungseigenschaften sowohl in Produktionsrichtung als auch quer zur Produktionsrichtung mit den experimentellen Verläufen verglichen.

Abbildung 6.11a) stellt diese relative Abweichung für die Membranprobe D und das Wickingverhalten in Produktionsrichtung als Konturdiagramm dar. Die Isolinien zeigen die Kombinationsmöglichkeiten aus gemittelter Oberflächenspannung und Kontaktwinkel mit der dazugehörigen relativen Abweichung. Hierbei wird die Isolinie in rot hervorgehoben, bei deren Kombination die projizierte Wickingzeit mit der experimentellen übereinstimmt. Wird nun dasselbe Vorgehen für das Wickingverhalten quer zur Produktionsrichtung durchgeführt, kann eine Kombination aus Kontaktwinkel $\bar{\theta}_{min}$ und Oberflächenspannung $\bar{\gamma}_{FG, min}$ gefunden werden, bei der die Gesamtabweichung in Produktionsrichtung und quer zur Produktionsrichtung minimal ist

$$\min \left(\frac{|t_{W, PR}(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta}) - t_{PR}|}{t_{PR}} + \frac{|t_{W, QR}(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta}) - t_{QR}|}{t_{QR}} \right). \quad (6.31)$$

Für die Membranprobe D ergibt sich mit diesem Vorgehen ein gemittelter Kontaktwinkel von $\bar{\theta}_{\min} = 19,3^\circ$ und eine gemittelte Oberflächenspannung von $\bar{\gamma}_{FG, \min} = 64,5 \text{ mN/m}$. In Abbildung 6.11b) wird das projizierte Wickingverhalten sowohl in Produktionsrichtung als auch quer dazu mit den experimentellen Verläufen verglichen. Für die Verläufe zeigt sich eine deutlich sichtbare Übereinstimmung. Wie bereits bei den Untersuchungen mit der Wickingflüssigkeit *Porefil*®, kann das anisotrope Wickingverhalten durch die richtungsabhängigen strukturellen Unterschiede erklärt werden.

Für die Membranproben A und B wurden in [3] Wickingexperimente in beide lateralen Richtungen mit Wasser durchgeführt. Dabei ergab sich für beide Proben bei einer Wickinghöhe von 40 mm in Produktionsrichtung eine mittlere Wickingzeit von $t_{W,PR} = 130 \text{ s}$ und quer zur Produktionsrichtung $t_{W,QR} = 151 \text{ s}$. Mit den effektiven Strukturparametern aus Tabelle 6.4 ergeben sich mit der hier vorgestellten Methode die in Tabelle 6.5 gezeigten gemittelten Werte für die

Tabelle 6.5: Gezeigt werden die gemittelten Benetzungseigenschaften beim Wicking mit destilliertem Wasser, welche mit der Methode aus Abschnitt 6.4 bestimmt wurden. Für die Proben A und B wurden die experimentelle Daten aus [3] verwendet.

Probe	$\bar{\gamma}_{FG}$ in (mN/m)	$\bar{\theta}$ in ($^\circ$)
A	17,51	53,10
B	11,74	54,30
D	19,30	64,50

Benetzungseigenschaften. Es zeigt sich, dass sowohl die Oberflächenspannung als auch der Kontaktwinkel im Vergleich zur Membranprobe D kleinere Werte aufweisen. Dies lässt sich damit erklären, dass die Anzahl an Tensiden, welche sich während dem Wickingprozess lösen und somit die Oberflächenspannung herabsetzen abhängig von der intrinsischen Membranoberfläche ist. Eine höhere Oberfläche führt zu einer höheren Herabsetzung der Oberflächenspannung [3], was sich damit deckt, dass die Membranprobe D im Vergleich zu Probe A und B eine deutlich kleinere spezifische Oberfläche hat (vgl. Tabelle 6.7).

6.5 Datengetriebene Analyse struktureller Zusammenhänge

In diesem Abschnitt wird zunächst die Erstellung eines umfassenden Membrandatensatzes durchgeführt, um diesen anschließend zu charakterisieren und die Wechselwirkungen der strukturellen Parameter zu untersuchen. Darauf aufbauend werden Funktionen abgeleitet, die die effektiven Strukturparameter, einschließlich des geometrischen Porenradius, der spezifischen Oberfläche, der Tortuosität, der Permeabilität und des effektiven Porenradius basierend auf den variablen Größen Porosität und Stegradius vorhersagen. Diese strukturellen Zusammenhänge werden mit den Struktureigenschaften realer Membranstrukturen verglichen, um ihre Validität zu überprüfen. Es sei angemerkt, dass die Parameter auch in Abhängigkeit anderer variabler Größen hergeleitet werden können. An dieser Stelle wurden jedoch die Porosität und der Stegradius gewählt, da sie kostengünstig mit den Methoden aus Abschnitt 4.1.1 und 4.1.2 bestimmt werden können und zudem keinen direkten Einfluss auf die Wickingvorhersage in Gleichung 6.12 haben.

6.5.1 Generierung Membrandatensatz

Zur Erzeugung eines umfassenden Membrandatensatzes wird in dieser Arbeit der in Abschnitt 3.2.2 vorgestellte Generierungsalgorithmus verwendet. Als Basis für den Algorithmus dienen CLSM-Aufnahmen von insgesamt drei verschiedenen Membrantypen der Proben E, F und G, welche mit einer Bildauflösung von 160 nm/Voxel aufgenommen wurden. Basierend auf der Wasserscheiden-Transformation des Porenraums der drei Membranproben werden pro Probe 54 synthetische Membranstrukturen erzeugt, wobei der mittlere Stegradius r_s von 0,5 μm bis 1,0 μm und die Porosität ε von 80 % bis 90 % variiert. Der Datensatz umfasst entsprechend insgesamt 162 Strukturen, wobei der untersuchte Parameterbereich an die Struktureigenschaften realer Diagnostikmembranen angepasst wurde. In diesem Abschnitt werden einige Voruntersuchung zur Erzeugung des

Datensatzes vorgestellt.

Wie in Abschnitt 3.2.2 erläutert, besteht die Möglichkeit, bei der Generierung der Stegstruktur sowohl einen mittleren Stegradius als auch eine Verteilung des Stegradius festzulegen. Dies wirkt sich wiederum auf die Verteilung des geometrischen Porenradius aus. Die Standardabweichungen (SD) des mittleren Stegradius r_s und des mittleren geometrischen Porenradius r_p wurden hier so gewählt, dass sie denen von Probe F entsprechen, wobei in Probe F ein mittlerer Stegradius von $0,81 \mu\text{m}$ ($SD=0,3$) und ein mittlerer Porenradius von $2,45 \mu\text{m}$ ($SD=1,01$) gemessen wurde. Abbildung 6.12a) zeigt den realen rekonstruierten digitalen Zwilling von Probe F und Abbildung 6.12b) eine darauf basierend synthetisch erzeugte Struktur. Um sicherzustellen, dass die untersuchte Gebietsgröße ein repräsentatives Volumenelement (RVE) abbildet, wird zunächst für alle untersuchten Strukturparameter eine RVE-Analyse durchgeführt. Dies gewährleistet, dass die untersuchten synthetischen Strukturen genügend Informationen über die Mikrostruktur der Membran enthalten. Dazu wird der Ansatz eines deterministischen RVE gewählt [3, 89], wobei für jede Probe sukzessiv eine Strukturgröße mit einer konstanten Gebietslänge $l_{x,y,z}$ untersucht und dem Ergebnis des Gesamtausschnittes gegenübergestellt wird. Dieser deterministische Ansatz wird in Abbildung 6.12c) verdeutlicht. Sobald die relative Abweichung des jeweiligen Parameters unter eine Grenze von 5 % fällt, kann diese Gebietsgröße mit der Kantenlänge $l_{x,y,z}$ für den jeweiligen Parameter als repräsentativ angesehen werden. Auf diese Weise werden die Strukturparameter Porosität, mittlerer Stegradius, mittlerer geometrischer Porenradius, spezifische Oberfläche, Tortuosität, Permeabilität und der effektive Porenradius untersucht. Da für diesen Datensatz eine Anisotropie nicht berücksichtigt wird, werden die richtungsabhängigen Parameter Tortuosität, Permeabilität und effektiver Porenradius lediglich in Produktionsrichtung untersucht.

Abbildung 6.12 zeigt die Ergebnisse dieser Untersuchung für Probe d) E, e) F und f) G. Für alle drei Proben ist erkennbar, dass für die Porosität, den mittleren Stegradius und die Tortuosität bereits ab einer Kantenlänge von $48 \mu\text{m}$ ein RVE vorliegt. Für den geometrischen Porenradius, die spezifische Oberfläche, die Permeabilität und den effektiven Porenradius liegt dies bei allen Proben ab

einer Kantenlänge von $96\ \mu\text{m}$ vor. Weiterhin zeigt sich für alle untersuchten Parameter ein asymptotisches Verhalten, wodurch keine Informationsänderung bei größeren Ausschnitten erwartet wird. Um sicherzustellen, dass der Membrandatensatz repräsentative Ergebnisse für alle untersuchten Parameter liefert, werden demnach alle für diesen Datensatz generierten Strukturen mit einer Kantenlänge von $96\ \mu\text{m}$ erzeugt.

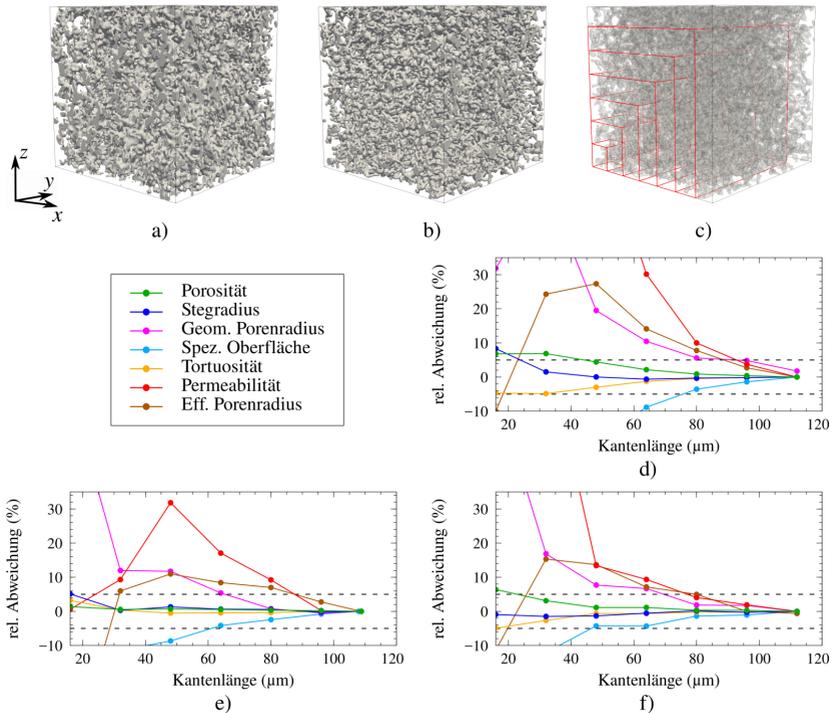


Abbildung 6.12: In a) wird der basierend auf den CLSM-Aufnahmen erzeugte digitale Zwilling der Membranprobe E veranschaulicht. Dabei wird der größtmögliche Ausschnitt mit einer Kantenlänge von $108,8\ \mu\text{m}$ abgebildet. In b) ist eine aus Probe E abgeleitete synthetische Struktur gezeigt. Das Vorgehen zur Bestimmung eines deterministischen RVE wird in c) verdeutlicht. Die Ergebnisse der Bestimmung eines deterministischen RVE für die Parameter Porosität, mittlerer Stegradus, mittlerer geometrischer Porenradius, spezifische Oberfläche, Tortuosität, Permeabilität und effektiver Porenradius werden für Probe E in d), Probe F in e) und Probe G in f) gezeigt.

6.5.2 Auswertung Membrandatensatz

Zur Ermittlung struktureller Wechselwirkungen werden für jede synthetische Struktur des zuvor beschriebene Membrandatensatzes die Strukturparameter Stegradius r_s , Porosität ε , geometrischer Porenradius r_p , spezifische Oberfläche S_V , Tortuosität τ , Permeabilität K und der effektive Porenradius r_{eff} berechnet. Anschließend wird jeder Parameter in Abhängigkeit vom Stegradius und der Porosität untersucht, wobei mittels Ansatzfunktionen für jeden Parameter f der jeweilige Zusammenhang $f(r_s, \varepsilon)$ ermittelt wird. Für den geometrischen Porenradius, die spezifische Oberfläche, die Tortuosität und den effektiven Porenradius wird die in Gleichung 6.32 gezeigte quadratische Funktion

$$f(r_s, \varepsilon) = ar_s^2 + br_s\varepsilon + c\varepsilon^2 + dr_s + e\varepsilon + f \quad (6.32)$$

und für die Permeabilität die folgende kubische Funktion

$$K(r_s, \varepsilon) = ar_s^3 + br_s^2\varepsilon + cr_s\varepsilon^2 + d\varepsilon^3 + er_s^2 + fr_s\varepsilon + g\varepsilon^2 + hr_s + i\varepsilon + j \quad (6.33)$$

mit den zwei Variablen Stegradius r_s und Porosität ε gewählt. Mithilfe des Programms Gnuplot 5.2 [90] und den Messwerten kann durch Anwendung der Methode der kleinsten Quadrate für jeden Strukturparameter f der jeweilige Anpassungsparameter $a, b, c, d, e, f, g, h, i$ und j bestimmt werden.

Um eine quantitative Aussage über die Güte der gewählten Anpassungsfunktion treffen zu können, wird für jeden Strukturparameter der Determinationskoeffizient R^2 berechnet. Dieser ist in der Statistik eine Kennzahl zur Beurteilung der Anpassungsgüte einer Regression. Ein R^2 -Wert nahe 100 % deutet auf eine sehr gute Anpassung hin, während ein Wert nahe 0 % auf eine schlechte Anpassung hinweist. Der Determinationskoeffizient wird mit

$$R^2 = \left(1 - \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2} \right) \cdot 100\%. \quad (6.34)$$

berechnet. Hier beschreibt y_i den i -ten Messwert der n -Messwerte, \hat{y}_i den dazugehörigen Wert der Schätzfunktion und \bar{y} den Mittelwert aller Messwerte.

6.5.3 Geometrischer Porenradius

Zunächst wird ein für den betrachteten Parameterbereich gültiger Zusammenhang zwischen den Strukturparametern Stegradius r_s , Porosität ε und dem geometrischen Porenradius r_p abgeleitet. Dazu werden diese drei Parameter für jede der 162 generierten Strukturen ermittelt, um anschließend mithilfe der in Gleichung 6.32 gezeigten Ansatzfunktion einen für den betrachteten Größenbereich gültigen Zusammenhang $r_p(r_s, \varepsilon)$ abzuleiten. Für die Anpassungsparameter werden die folgenden Werte

$$a = 1,621 \mu\text{m}, \quad b = 15,66, \quad c = 48,97 \mu\text{m}, \\ d = -13,79, \quad e = -87,56 \mu\text{m}, \quad f = 40,62 \mu\text{m}$$

ermittelt, wobei sich nach Gleichung 6.34 ein Determinationskoeffizient von $R^2 = 96,51\%$ ergibt. In Abbildung 6.13a) werden alle ermittelten Messwerte als rote Punkte und die approximierte Funktion $r_p(r_s, \varepsilon)$ als blaue Fläche abgebildet. Für eine verbesserte Darstellung wird $r_p(r_s, \varepsilon)$ zusätzlich als Konturdiagramm in

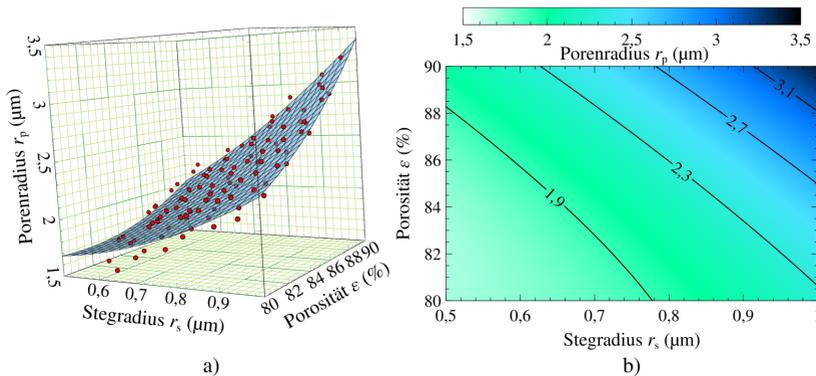


Abbildung 6.13: In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die Anpassungsfunktion $r_p(r_s, \varepsilon)$, welche in b) als Konturdiagramm abgebildet wird.

Abbildung 6.13b) dargestellt. Es zeigt sich, dass sich für den betrachteten Größenbereich $r_p(r_s, \varepsilon)$ zwischen $1,7 \mu\text{m}$ bis $3,4 \mu\text{m}$ liegt. Zusätzlich wird ersichtlich, dass sich der geometrische Porenradius bei konstanter Porosität mit steigendem Stegradius erhöht. Dies lässt sich damit begründen, dass bei konstanter Porosität mit steigendem Stegradius die Anzahl der Stege sinkt, wodurch sich wiederum der geometrische Porenradius erhöht.

Zur Überprüfung, ob der hier ermittelte Zusammenhang zwischen der Porosität, dem mittleren Stegradius und dem geometrischen Porenradius valide Ergebnisse liefert, wird in Tabelle 6.6 für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G der gemessene geometrische Porenradius r_p dem prognostizierten Wert $r_p(r_s, \varepsilon)$ gegenübergestellt. Für fünf der sieben Proben zeigt sich eine relative Abweichung von unter 6%. Bei den zwei Proben A, B, welche aus der Veröffentlichung [3] stammen, sind die relativen Abweichung gering höher, jedoch stets in einem akzeptablen Bereich von maximal 10,41%.

Zusammenfassend konnte demnach eine für offenporige hochporöse Diagnostikmembranen Funktion $r_p(r_s, \varepsilon)$ zur Vorhersage des geometrischen Porenradius

Tabelle 6.6: Gegenüberstellung der Messung des geometrischen Porenradius r_p mit dem prognostizierten geometrischen Porenradius $r_p(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Die Porosität ε , der mittlere Stegradius r_s und der geometrische Porenradius r_p wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt, während $r_p(r_s, \varepsilon)$ berechnet wird. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert des geometrischen Porenradius.

Probe	ε in (%)	r_s in (μm)	r_p in (μm)	$r_p(r_s, \varepsilon)$ in (μm)	$ \Delta r_p /r_p$ in (%)
A	82,40	0,72	1,73	1,91	10,41
B	82,02	0,67	1,67	1,83	9,58
C	88,90	0,64	2,16	2,22	2,78
D	89,86	0,69	2,36	2,44	3,39
E	82,93	0,80	2,20	2,07	5,91
F	85,77	0,81	2,45	2,31	5,71
G	80,89	0,78	1,87	1,94	3,74

abgeleitet werden, wobei diese im betrachteten Parameterbereich gute Übereinstimmungen mit experimentellen Ergebnissen liefert.

6.5.4 Spezifische Oberfläche

In diesem Abschnitt wird die Funktion $S_V(r_s, \varepsilon)$ zur Vorhersage der spezifischen Oberfläche in Abhängigkeit des mittleren Stegradius und der Porosität abgeleitet. Dazu wird wie im vorherigen Abschnitt die aus Gleichung 6.32 bekannte quadratische Funktion mit den zwei Variablen Stegradius r_s und Porosität ε gewählt. Folgende Werte

$$a = 2,420 \cdot 10^{11} \text{ l / ml}, \quad b = 1,306 \cdot 10^6 \text{ m / ml}, \quad c = -2,532 \text{ m}^2 / \text{ ml}, \\ d = -1,833 \text{ m / ml}, \quad e = 1,704 \text{ m}^2 / \text{ ml}, \quad f = 1,091 \text{ m}^2 / \text{ ml}$$

konnten für die Anpassungsparameter ermittelt werden. Für den Determinationskoeffizient R^2 ergibt sich hierbei nach Gleichung 6.34 ein Wert von $R^2 = 99,34\%$. Die gewählte Ansatzfunktion bildet die Messwerte entsprechend ab. Dies bestätigt sich ebenfalls visuell in Abbildung 6.14a). Dort wird die approximierte Funktion $S_V(r_s, \varepsilon)$ als blaue Fläche und die Messwerte des Membrandatensatzes als rote Punkte dargestellt. Weiterhin wird in Abbildung 6.14b) die Funktion $S_V(r_s, \varepsilon)$ für den betrachteten Parameterbereich als Konturdiagramm dargestellt. Es ist zu erkennen, dass sich die spezifische Oberfläche bei gleichbleibender Porosität mit steigendem Stegradius verkleinert. Dies kann damit begründet werden, dass sich die Anzahl der Stege bei konstanter Porosität mit steigendem Stegradius verkleinert und sich somit auch die intrinsische Membranoberfläche verkleinert. Darüber hinaus wird deutlich, dass entlang der markierten Isolinien eine Vielzahl von Kombinationen aus Porosität und Stegradius zu derselben spezifischen Oberfläche führen können.

Zur Validierung der berechneten Funktion $S_V(r_s, \varepsilon)$ wird in Tabelle 6.7 der Wert der spezifischen Oberfläche S_V , welcher gemäß der Methode aus Abschnitt 4.1.4

Tabelle 6.7: Gegenüberstellung der Messung der spezifischen Oberfläche S_V mit der prognostizierten spezifischen Oberfläche $S_V(r_s, \epsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradradius r_s und die Porosität ϵ welche zur Berechnung von $S_V(r_s, \epsilon)$ verwendet wurden, wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert der spezifischen Oberfläche.

Probe	ϵ in (%)	r_s in (μm)	S_V in (m^2/ml)	$S_V(r_s, \epsilon)$ in (m^2/ml)	$ \Delta S_V /S_V$ in (%)
A	82,40	0,72	0,356	0,360	1,12
B	82,02	0,67	0,380	0,387	1,84
C	88,90	0,64	0,256	0,276	7,8
D	89,86	0,69	0,214	0,239	11,68
E	82,93	0,80	0,296	0,319	7,77
F	85,77	0,81	0,250	0,273	9,20
G	80,89	0,78	0,340	0,357	5,00

ermittelt wurde, mit der Approximation für die sieben Membranproben A, B, C, D, E, F und G verglichen. Hierbei zeigt sich, dass die spezifische Oberfläche

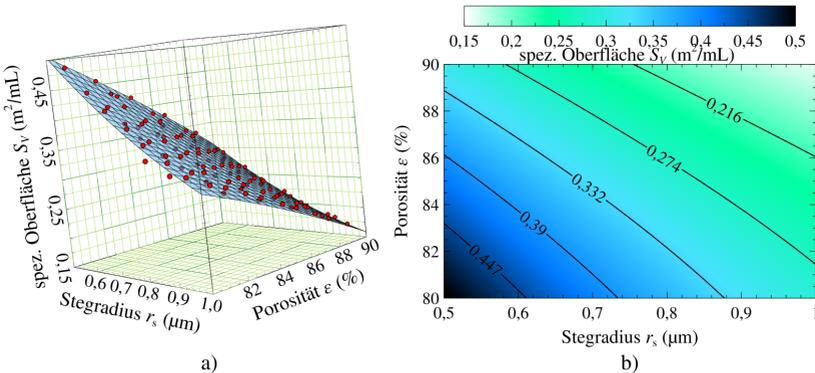


Abbildung 6.14: In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die dazugehörige Anpassungsfunktion $S_V(r_s, \epsilon)$. Zur besseren Veranschaulichung wird $S_V(r_s, \epsilon)$ in b) zusätzlich als Konturdiagramm abgebildet.

mit einer maximalen relativen Abweichung von 12 % vorhergesagt werden kann, wobei der approximierte Wert $S_V(r_s, \varepsilon)$ im Vergleich zu dem tatsächlichen Wert S_V stets leicht überschätzt wird.

6.5.5 Tortuosität

Im Folgenden wird die Funktion $\tau(r_s, \varepsilon)$ zur Vorhersage der Tortuosität in Abhängigkeit der Porosität und des mittleren Stegradius abgeleitet. Mit der Ansatzfunktion aus Gleichung 6.32 ergeben sich die nachfolgenden Anpassungsparameter

$$a = 0,1451 / \mu\text{m}^2, \quad b = 1,2611 / \mu\text{m}, \quad c = 2,380,$$

$$d = -1,4031 / \mu\text{m}, \quad e = -6,307, \quad f = 4,952$$

für $\tau(r_s, \varepsilon)$. Für den Determinationskoeffizient R^2 ergibt sich nach Gleichung 6.34 ein Wert von $R^2 = 99,31\%$, wodurch statistisch bestätigt wird, dass die gewählte Ansatzfunktion sehr gut die Abhängigkeiten der Messwerte abbildet. Dies bestätigt sich ebenfalls visuell in Abbildung 6.15a). Dort wird die approximierte Funk-

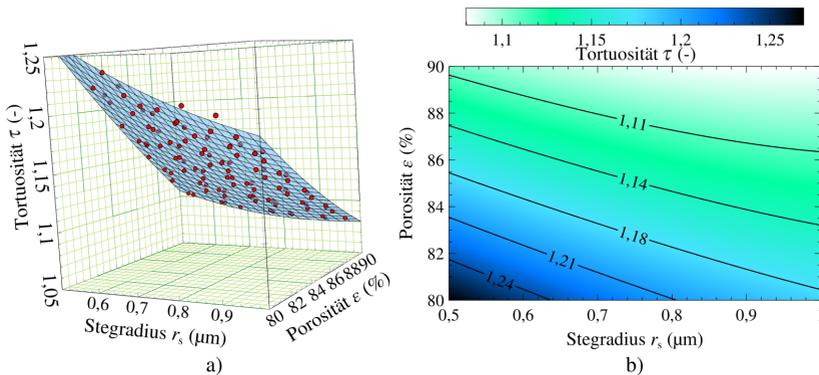


Abbildung 6.15: In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die dazugehörige Anpassungsfunktion $\tau(r_s, \varepsilon)$. Zur besseren Veranschaulichung wird $\tau(r_s, \varepsilon)$ in b) zusätzlich als Konturdiagramm abgebildet.

tion $\tau(r_s, \varepsilon)$ als blaue Fläche dargestellt und die Messwerte des Membrandatensatzes werden als rote Punkte abgebildet. Weiterhin wird in Abbildung 6.15b) die Funktion $\tau(r_s, \varepsilon)$ für den betrachteten Parameterbereich als Konturdiagramm dargestellt. Zum einen zeigt sich, dass die Tortuosität für den betrachteten Porositäts- und Stegradiusbereich lediglich zwischen 1,08 und 1,27 variiert. Zum anderen zeigt sich bei konstanter Porosität mit steigendem Stegradius eine Verkleinerung der Tortuosität. Dies lässt sich erneut mit der Anzahl an Stegen begründen: Um den kürzesten Pfad zwischen zwei Punkten abzubilden, müssen bei konstanter Porosität, mit sinkender Anzahl an Stegen, weniger umwunden werden. Zur Validierung der berechneten Funktion $\tau(r_s, \varepsilon)$ wird in Tabelle 6.8 der Wert der Tortuosität τ , der gemäß der Methode aus Abschnitt 4.1.5 ermittelt wurde,

Tabelle 6.8: Gegenüberstellung der Messung der Tortuosität τ mit der prognostizierten Tortuosität $\tau(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ε welche zur Berechnung von $\tau(r_s, \varepsilon)$ verwendet wurden, wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert der Tortuosität.

Probe	ε in (%)	r_s in (μm)	τ (-)	$\tau(r_s, \varepsilon)$ (-)	$ \Delta\tau /\tau$ in (%)
A	82,40	0,72	1,198	1,184	1,17
B	82,02	0,67	1,211	1,198	1,07
C	88,90	0,64	1,119	1,105	1,25
D	89,86	0,69	1,119	1,089	2,68
E	82,93	0,80	1,235	1,165	5,67
F	85,77	0,81	1,163	1,128	3,01
G	80,89	0,78	1,257	1,197	4,77

mit der Approximation für die sieben Membranproben A, B, C, D, E, F und G verglichen. Hierbei zeigt sich, dass die Tortuosität sehr gut mit einer maximalen relativen Abweichung von 5,67 % vorhergesagt werden kann, wobei der approximierte Wert $\tau(r_s, \varepsilon)$ im Vergleich zu dem tatsächlichen Wert τ stets leicht unterschätzt wird.

6.5.6 Permeabilität

Als vorletzter Parameter wird in diesem Abschnitt die Wechselwirkung $K(r_s, \varepsilon)$ zwischen der Permeabilität, dem mittleren Stegradius und der Porosität untersucht. Die Permeabilität in den synthetisch generierten Strukturen wird mithilfe der voxelbasierten binären Struktur, wie in Abschnitt 4.1.6 beschrieben, bestimmt. Da eine Approximation mit einer Ansatzfunktion zweiten Grades kein zufriedenstellendes Ergebnis lieferte, wird als Ansatzfunktion die kubische Funktion aus Gleichung 6.33 gewählt, wobei die Anpassungsparameter

$$\begin{aligned} a &= 5,731 / \mu\text{m}, & b &= 120,59, & c &= 780,12 \mu\text{m}, & d &= 1787,7 \mu\text{m}^2, \\ e &= -111,63, & f &= -1464 \mu\text{m}, & g &= -4990 \mu\text{m}^2, & h &= 688,22 \mu\text{m}, \\ i &= 4657,4 \mu\text{m}^2, & j &= -1452,3 \mu\text{m}^2 \end{aligned}$$

ermittelt werden. Für den Determinationskoeffizient R^2 ergibt sich nach Gleichung 6.34 ein Wert von $R^2 = 98,71\%$, wodurch statistisch bestätigt wird, dass die gewählte Ansatzfunktion die Abhängigkeiten der Messwerte abbildet. Dies

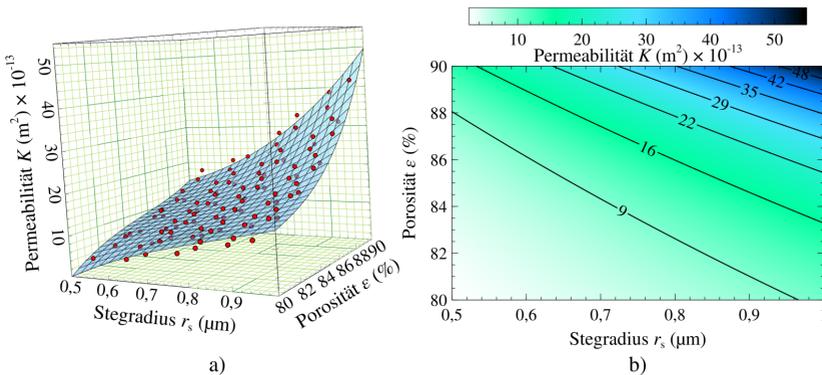


Abbildung 6.16: In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der Permeabilität in den synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die dazugehörige Anpassungsfunktion $K(r_s, \varepsilon)$. Zur besseren Veranschaulichung wird $K(r_s, \varepsilon)$ in b) zusätzlich als Konturdiagramm abgebildet.

Tabelle 6.9: Gegenüberstellung der Messung der Permeabilität K mit der prognostizierten Permeabilität $K(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ε , welche zur Berechnung von $K(r_s, \varepsilon)$ verwendet wurden, wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt und können Tabelle 6.6 entnommen werden. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert der Permeabilität.

Probe	ε in (%)	r_s in (μm)	K in (m^2) $\times 10^{-13}$	$K(r_s, \varepsilon)$ in (m^2) $\times 10^{-13}$	$ \Delta K /K$ in (%)
A	82,40	0,72	7,78	10,13	30,21
B	82,02	0,67	6,86	8,78	27,99
C	88,90	0,64	16,83	16,89	0,36
D	89,86	0,69	23,00	21,86	4,96
E	82,93	0,80	9,89	12,29	24,27
F	85,77	0,81	18,35	16,48	10,19
G	80,89	0,78	7,82	10,08	28,90

bestätigt sich ebenfalls visuell in Abbildung 6.16a). Dort werden die approximierte Funktion $K(r_s, \varepsilon)$ als blaue Fläche und die Messwerte des Membrandatensatzes als rote Punkte dargestellt. Weiterhin wird in Abbildung 6.16b) die Funktion $K(r_s, \varepsilon)$ für den betrachteten Parameterbereich als Konturdiagramm dargestellt. Hierbei zeigt sich, dass eine Vergrößerung des Stegradius bei konstanter Porosität einen Anstieg der Permeabilität zur Folge hat. Dies lässt sich wieder mit der Anzahl an Stegen begründen: Bei konstanter Porosität liegen mit steigendem Stegradius weniger Stege als Strömungshindernisse vor. Zudem nimmt nach Abbildung 6.14b) die spezifische Oberfläche ab, was wiederum zu einem verringerten Reibungswiderstand führt.

Der Vergleich der gemessenen und approximierten Permeabilitätswerte für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G wird in Tabelle 6.9 gegenübergestellt. Auffällig ist, dass die Membranproben A, B, E und G, welche allesamt in dem betrachteten Porositätsbereich niedrigere Porositäten von $\varepsilon < 82,5\%$ haben, hohe relative Abweichungen von über 24 % aufweisen. Dabei wird der approximierte Wert der Permeabilität stets überschätzt. Für die Membranproben C und D mit hohen Porositäten von $\varepsilon > 88,9\%$ kann die Permeabilität sehr gut abgeschätzt

werden. Für die Membranprobe F, welche im betrachteten Porositätsbereich eine mittlere Porosität von 85,77 % besitzt, kann die Permeabilität mit einer akzeptablen relativen Abweichung von 10,19 % prognostiziert werden. Aufgrund des hohen Determinationskoeffizienten und des visuellen Vergleichs zwischen der Ansatzfunktion und den Messwerten in Abbildung 6.16a) wird deutlich, dass die gewählte Ansatzfunktion die ermittelten Messwerte sehr gut wiedergibt. Die Abweichung zwischen den realen Membranproben und der Permeabilitätsvorhersage für niedrigere Porositäten liegt wahrscheinlich darin begründet, dass die synthetisch generierten Strukturen für Porositäten von weniger als 82,5 % das reale Strukturverhalten bezüglich der Permeabilität nicht ausreichend abbilden.

6.5.7 Effektiver Porenradius

Als letzter Parameter zur Analyse der strukturellen Wechselwirkung wird der effektive Porenradius r_{eff} untersucht. Dieser wird nach der in Abschnitt 6.3 vorgestellten Methode bestimmt. Als Ansatzfunktion zur Approximation von $r_{\text{eff}}(r_s, \varepsilon)$ wird erneut die in Gleichung 6.32 dargestellte quadratische Funktion mit den zwei Variablen Stegradius r_s und Porosität ε gewählt. Für die Anpassungsparameter werden die nachfolgenden Werte

$$\begin{aligned} a &= 17,254 \text{ l}/\mu\text{m}, \quad b = 224,832, \quad c = 870,78 \mu\text{m}, \\ d &= -199,109, \quad e = -1553,3 \mu\text{m}, \quad f = 699,96 \mu\text{m} \end{aligned}$$

ermittelt. Für den Determinationskoeffizient R^2 ergibt sich nach Gleichung 6.34 ein Wert von $R^2 = 97,63\%$, wodurch statistisch bestätigt wird, dass die gewählte Ansatzfunktion die Abhängigkeiten der Messwerte abbildet. Dies bestätigt sich ebenfalls visuell in Abbildung 6.17a). Dort wird die approximierte Funktion $r_{\text{eff}}(r_s, \varepsilon)$ als blaue Fläche dargestellt und die Messwerte des Membrandatensatzes als rote Punkte abgebildet. Weiterhin wird in Abbildung 6.17b) die Funktion $r_{\text{eff}}(r_s, \varepsilon)$ für den betrachteten Parameterbereich als Konturdiagramm dargestellt.

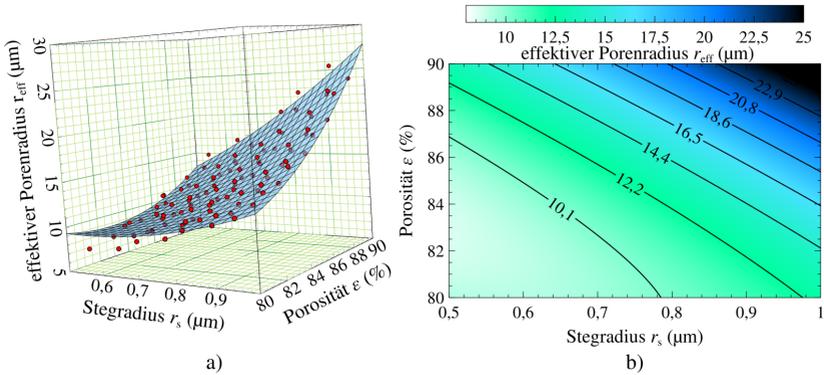


Abbildung 6.17: In a) werden die ermittelten Messwerte des effektiven Porenradius r_{eff} in den synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die Anpassungsfunktion $r_{\text{eff}}(r_s, \epsilon)$, welche in b) zur besseren Veranschaulichung als Konturdiagramm abgebildet ist.

Die Gegenüberstellung der Approximation $r_{\text{eff}}(r_s, \epsilon)$ mit den Messdaten des effektiven Porenradius der Membranproben A, B, C, D, E, F und G wird in Tabelle 6.10 gezeigt. Hierbei zeigt sich lediglich für die Probe D eine deutliche Unter-

Tabelle 6.10: Gegenüberstellung des gemessenen und prognostizierten effektiven Porenradius für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ϵ wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert des effektiven Porenradius.

Probe	ϵ in (%)	r_s in (μm)	r_{eff} in (μm)	$r_{\text{eff}}(r_s, \epsilon)$ in (μm)	$ \Delta r_{\text{eff}} /r_{\text{eff}}$ in (%)
A	82,40	0,72	10,45	10,23	2,11
B	82,02	0,67	9,57	9,61	0,42
C	88,90	0,64	16,53	14,81	10,41
D	89,86	0,69	21,62	17,51	19,01
E	82,93	0,80	11,33	11,61	2,47
F	85,77	0,81	16,70	14,53	12,99
G	80,89	0,78	10,96	10,32	5,84

schätzung mit einer relativen Abweichung von 19 %. Für diese Probe zeigt sich bei der spezifischen Oberfläche in Tabelle 6.7 eine Überschätzung von 11,68 %, was eine Unterschätzung des effektiven Porenradius erklären könnte. Dies zeigt sich ebenfalls bei den Proben C und F, wobei $r_{\text{eff}}(r_s, \varepsilon)$ im Vergleich zum gemessenen Wert r_{eff} eine relative Abweichung von 10,41 % und 12,99 % aufweist. Bei den verbleibenden Membranproben wird der effektive Porenradius mit einer akzeptablen Abweichung von maximal 6 % vorhergesagt.

6.6 Datengetriebene Struktur-Wicking Analyse

Die in Abschnitt 6.5 gewonnenen Erkenntnisse über die strukturellen Wechselwirkungen der Tortuosität, der Permabilität und des effektiven Porenradius in porösen Membranen werden in diesem Abschnitt genutzt, um mithilfe des makroskopischen Modellierungsansatzes aus Gleichung 6.7 die skalenübergreifende Wechselwirkung zwischen der Membranstruktur und dem Wickingverhalten abzubilden. Abbildung 6.18a) verdeutlicht die zu überbrückende Längenskala zwischen der Membranmikrostruktur und dem Wickingprozess in einem Lateral-Flow-Test. Als variable Strukturparameter werden wie in den vorangegangenen Untersuchungen der mittlere Stegradius und die Porosität betrachtet. Um dies zu realisieren, werden zunächst einige notwendige Vereinfachungen angenommen. Einerseits wird ein isotropes Wickingverhalten vorausgesetzt und andererseits als Wickingflüssigkeit destilliertes Wasser betrachtet. Der eigentlich dynamische Benetzungsprozess wird mit konstanten Benetzungseigenschaften modelliert. Als Benetzungseigenschaften werden die Mittelwerte aus den in Tabelle 6.5 beschriebenen Oberflächenspannungen und Kontaktwinkeln berechnet und als Wickinghöhe wird eine Distanz von 40 mm betrachtet. Somit ergibt sich für die gemittelte Oberflächenspannung $\bar{\gamma}_{\text{FG}} = 57,3 \text{ mN/m}$ und für den gemittelten Kontaktwinkel $\bar{\theta} = 16,18^\circ$.

Unter diesen Annahmen wird in Abbildung 6.18b) zunächst das Wickingverhalten exemplarisch für drei verschiedene Membranen gezeigt. Dabei wird für alle Membranen derselbe mittlere Stegradius von $0,68 \mu\text{m}$ gewählt und die Porosität

von 82 % über 85 % bis 89 % variiert. Zunächst fällt auf, dass die Kurven den klassischen Verlauf abbilden, bei dem das Wickingverhalten im Allgemeinen mit einer Wurzelfunktion $h \sim t^{0,5}$ beschrieben werden kann. Weiterhin zeigt sich, dass mit steigender Porosität die Wickingzeit abnimmt. Dies lässt sich strukturell begründen: Gemäß der Gleichung $K(r_s, \varepsilon)$ und Abbildung 6.16b) nimmt die Permeabilität K bei konstantem Stegradius r_s mit steigender Porosität ε zu. Gleichzeitig nimmt die Tortuosität τ wie in Abbildung 6.15b) dargestellt ab, was wiederum zu einer Abnahme der Reibungs- und Gravitationskraft in der Impulsgleichung 6.7 führt.

Eine innerhalb des betrachteten Parameterbereichs gültige Struktur-Wickingzeit-Beziehung stellt Abbildung 6.18c) dar. Hierbei wird die Wickingzeit t_W in Abhängigkeit der Strukturparameter mittlerer Stegradius und Porosität als Konturdiagramm abgebildet. Es zeigt sich ebenfalls, dass das Wickingverhalten mit steigender Porosität und steigendem Stegradius beschleunigt wird. Weiterhin wird bei konstanter Porosität mit steigendem Stegradius die Wickingzeit verkürzt. Eine weitere Erkenntnis zeigt das Vorhandensein der Isolinien, entlang derer mit einer Vielzahl an Kombinationsmöglichkeiten dieselbe Wickingzeit erreicht werden kann. Dies kann beispielsweise bei der Gestaltung von LFTs genutzt werden, indem man die gleiche Wickingzeit entlang der Isolinien beibehält, um gleichzeitig die strukturellen Parameter für andere Anforderungen zu optimieren. Äquivalent dazu wird in Abbildung 6.18d) die mit Gleichung 6.10 ermittelte Wickinggeschwindigkeit v_W nach einer Wickinglänge von 40 mm dargestellt. Es zeigt sich, ähnlich wie bei der Wickingzeit, dass bei konstanter Porosität eine Zunahme des Stegradius zu einer Erhöhung der Geschwindigkeit v_W führt und dass bei konstantem Stegradius ein Anstieg der Porosität ebenfalls eine Zunahme der Geschwindigkeit v_W herbeiführt.

6.7 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde zunächst ein skalenübergreifendes Wickingmodell, basierend auf der Arbeit von Fries [33], um den Beitrag einer Tortuosität erweitert.

Des Weiteren wurde eine Methode zur Modellierung des im Wickingmodell abgebildeten Kapillareffekts entwickelt. Diese Methode basiert auf zweiphasigen Phasensimulationen in digitalen Zwillingen poröser Strukturen und mündet in der Berechnung eines effektiven Porenradius. Im Vergleich zu Methoden aus der Literatur, liegt die Besonderheit hierbei darin, dass diese Methode eine strukturelle Anisotropie abbilden kann. Das resultierende Wickingmodell und die Methode zur Berechnung eines effektiven Porenradius wurden experimentell validiert, wobei eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der Vorhersage und den experimentellen Ergebnissen festgestellt wurde. Die Experimente zeigten zudem, dass ein beobachtbares anisotropes Wickingverhalten in Produktionsrichtung und quer zur Produktionsrichtung strukturell begründbar ist. Die Strukturparameter Permeabilität, Tortuosität und der effektive Porenradius weisen ein anisotropes Verhalten auf, welches wiederum das richtungsabhängige Wickingverhalten verursacht. Dieses anisotrope Wickingverhalten wurde anschließend ausgenutzt, um mithilfe der zuvor entwickelten Modelle und Charakterisierungsmethoden das Benetzungsverhalten genauer zu untersuchen und gemittelte Benetzungseigenschaften für die Oberflächenspannung und den Kontaktwinkel abzuleiten.

Diese Erkenntnisse bildeten die Grundlage für die Ableitung einer innerhalb des betrachteten Parameterbereichs gültigen Struktur-Wickingzeit-Beziehung. Hierzu wurde zunächst eine umfassende Membrandatenbank mit insgesamt 162 Strukturen unterschiedlichster Merkmale generiert und anschließend strukturell analysiert. Die Charakterisierung aller synthetischen Strukturen wurde genutzt, um Zusammenhänge zwischen den strukturellen Parametern abzuleiten. Die resultierenden Zusammenhänge wurden mit realen Membrandaten verglichen, wobei sich zeigte, dass die Vorhersagen für die Parameter geometrischer Porenradius, spezifische Oberfläche und Tortuosität sehr gute Übereinstimmungen mit relativen Abweichungen von unter 12 % lieferten. Bei der Vorhersage der Permeabilität zeigten sich besonders für Porositäten von weniger als 82,5 % deutliche relative Abweichungen von bis zu 30 %. In reale Membranen mit höheren Porositäten konnten hingegen die Wechselwirkungen der Strukturparameter sehr gut abgebildet werden. Für eine optimierte Vorhersage der Permeabilität bei niedrigen Porositäten besteht hier zukünftig Optimierungsbedarf in der Generierung der synthetischen Strukturen. Abschließend wurden die gewonnenen Erkenntnisse

über die strukturelle Wechselwirkung auf der Mikrostrukturskala verwendet, um mithilfe des bereits erwähnten Wickingmodells die Struktur-Wicking-Beziehung abzuleiten. Dabei zeigt sich, dass das Wickingverhalten bei konstanter Porosität mit steigendem Stegradius beschleunigt wird. Zudem wird deutlich, dass ein und dasselbe Wickingverhalten mit einer Vielzahl an Strukturen realisiert werden kann. Dies ist von besonderem Interesse, da im Membranauslegungsprozess unter Beibehaltung der Wickingeigenschaften die strukturellen Eigenschaften für andere Anforderungen angepasst werden können, wodurch beispielsweise die Sensitivität der Test- und Kontrolllinie erhöht werden kann.

Des Weiteren bieten die hier gewonnenen Erkenntnisse über die strukturellen Wechselwirkungen wichtige Anhaltspunkte für die folgenden Untersuchungen zum Zusammenhang zwischen der Membranstruktur und der Ausbreitung von aufgetragenen Tropfen.

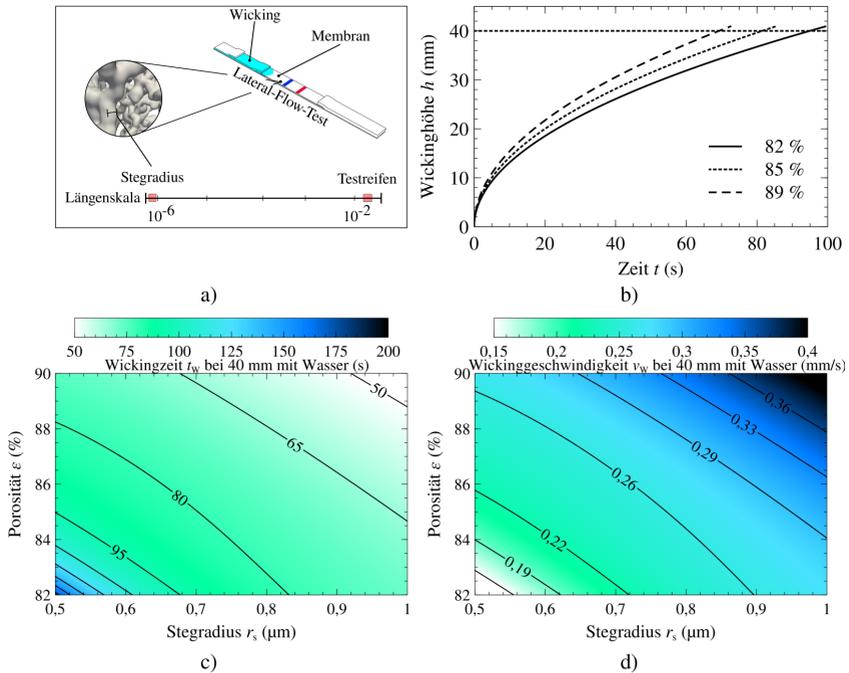


Abbildung 6.18: In a) wird zunächst der Größenunterschied zwischen der Mikrostruktur und dem makroskopisch sichtbaren Wickingverhalten illustriert. In b) wird das Wickingverhalten exemplarisch für drei verschiedene Membranen dargestellt. Dabei wurde für alle Membranen derselbe mittlere Stegradius von $0,68 \mu\text{m}$ gewählt, während die Porosität von 82 % über 85 % bis 89 % variiert. Eine innerhalb des betrachteten Parameterbereichs gültige Struktur-Wickingzeit-Beziehung wird in Abbildung c) als Konturdiagramm präsentiert. Dabei zeigt das Konturdiagramm die Wickingzeit t_w bei einer Wickinglänge von 40 mm über den Strukturparametern Stegradius und Porosität. Entsprechend dazu wird in d) die zugehörige Struktur-Wickinggeschwindigkeit-Beziehung dargestellt. Als Wickingflüssigkeit wurde in allen Fällen destilliertes Wasser angenommen.

7 Struktureller Einfluss auf die Test- und Kontrolllinie

Dieses Kapitel widmet sich einer eingehenden Analyse der kapillarbedingten Flüssigkeitsaufnahme, die bei der Herstellung der Test- und Kontrolllinie auf einer Diagnostikmembran stattfindet. Die Antikörper, die mittels einer Pufferlösung als Linie auf die Diagnostikmembran aufgetragen werden, sind im Vergleich zu anderen Komponenten eines realen Testsystems kostspielig. Darüber hinaus hat die resultierende Breite der Testlinie einen signifikanten Einfluss auf die Sensitivität, sprich die Qualität des Testsignals. Daher ist ein fundiertes Verständnis der zugrundeliegenden Wechselwirkungen und Mechanismen essenziell.

Die vorliegende Analyse konzentriert sich auf das Zusammenspiel der strukturellen Eigenschaften einer porösen Membran und der daraus resultierenden Flüssigkeitsverteilung. Dazu erfolgt zunächst eine experimentelle Untersuchung der Ausbreitung eines auf die Membran aufgetragenen Tropfens. Die Besonderheit besteht dabei darin, dass mittels der Konfokalmikroskopie ein dreidimensionales Abbild der benetzenden Flüssigkeit und der dazugehörigen Struktur erstellt und analysiert werden kann. Anschließend erfolgt eine umfassende experimentelle Analyse der Auftragung und Ausbreitung einer Linie auf eine Diagnostikmembran. An dieser Stelle wird ebenfalls durch das Anwenden der Konfokalmikroskopie eine Verbindung zwischen der Struktur der Membran und der resultierenden Linienbreite hergestellt.

7.1 Stand der Forschung

Die Erforschung des Benetzungsverhaltens von Flüssigkeiten auf homogenen und glatten Oberflächen ist seit langem ein zentrales Thema in der Wissenschaft und wurde in verschiedenen Studien [91–93] experimentell untersucht. Darauf aufbauend analysierten Clarke et al. [94] das Verhalten von Tropfen auf festen Substraten mit poröser Oberfläche, um realistische Phänomene besser zu beschreiben. Starov [95] konzentriert sich dabei auf die experimentelle Untersuchung und mathematische Beschreibung der gleichzeitigen Ausbreitungs- und Eindringungsprozesse der Flüssigkeit. Lee et al. [96] bieten einen umfassenden Überblick über die durchgeführten experimentellen Untersuchungen und deren mathematische Beschreibungen zum Thema der Ausbreitung und dem Eindringen eines Fluids auf festen Substraten mit poröser Oberfläche.

Die Benetzung von Flüssigkeiten auf porösen Strukturen spielt eine entscheidende Rolle in zahlreichen Anwendungsbereichen. Besonders interessant ist der kapillargetriebene Prozess der Aufsaugung (engl. *imbibition*), bei dem die Flüssigkeit auf die Oberfläche einer Struktur aufgetragen wird und anschließend in die poröse Struktur eindringt. Dieser Prozess ermöglicht eine Vielzahl von industriellen Anwendungen, darunter Tintenstrahldrucker [97], die Beschichtung poröser Strukturen [98] sowie die Durchführung medizinischer Schnelltests [23]. Ein umfassendes Verständnis des strukturellen Einflusses des porösen Mediums auf die Ausbreitung der Flüssigkeit ist daher von entscheidender Bedeutung für die technologische Entwicklung und den Fortschritt in diesen Branchen. Um dies zu erreichen, führte Hua Tan in [99] sowohl experimentelle als auch numerische Untersuchungen zur Aufsaugung kleinster Tropfen in porösen Strukturen durch. Dabei wurde festgestellt, dass der Prozess in drei unterschiedliche Zeitskalen eingeteilt werden kann: Die initiale Oberflächenbenetzung und Ausbreitung finden in den ersten Mikrosekunden statt, gefolgt von dem kapillargetriebenen Aufsaugungsprozess in Millisekunden und schließlich dem abschließenden Verdunstungsprozess. Weiterhin wird in [100] von Ezzatneshan et al. untersucht, wie sowohl die Benetzungseigenschaften als auch die strukturellen Merkmale

den Aufsaugungsprozess in einer porösen Faserstruktur beeinflussen. Die Analyse der Flüssigkeitsausbreitung in porösen Strukturen mittels Konfokalmikroskopie wird in [101] beschrieben. Darin wird erstmalig ein dreidimensionales Abbild sowohl von Öltropfen auf porösen Faserstrukturen als auch von den dazugehörigen Faserstrukturen selbst erstellt. Dies wird in der vorliegenden Arbeit aufgegriffen, indem die Verknüpfung zwischen der Ausbreitung von Flüssigkeiten in einer porösen Diagnostikmembran und ihren strukturellen Eigenschaften untersucht wird. Hierfür wird mittels Konfokalmikroskopie ein digitales Abbild der Flüssigkeitsausbreitung und der zugehörigen Membranstruktur erstellt und analysiert. Dies ermöglicht ein verbessertes Verständnis von der Präparation der Test- und Kontrolllinie bei einem Lateral-Flow-Test.

7.2 Experimentelle Mikroskopie und Analyse der Tropfenausbreitung

Um eine tiefere Einsicht zu gewinnen, inwiefern die Membranstruktur die Flüssigkeitsausbreitung beeinflusst, entwickelte die Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* eine innovative experimentelle Methode. Diese ermöglicht es, die Ausbreitung eines auf die Membran aufgetragenen Tropfens zu mikroskopieren und parallel dazu ein detailliertes Bild der entsprechenden Membranstruktur zu erstellen.

7.2.1 Experimenteller Aufbau

Zunächst wird ein Ausschnitt einer porösen Diagnostikmembran entsprechend der im Abschnitt 3.1.1 beschriebenen Methode zur Probenpräparation mit dem Fluoreszenzfarbstoff *Alexa Fluor®555* benetzt. Um die Membranstruktur angemessen darstellen zu können, sollte gemäß [3] die gewählte Bildauflösung des

bildgebenden Verfahrens nicht größer als 200 nm/Voxel sein. Daher ist es erforderlich, die aufgetragene Tropfenmenge möglichst gering zu halten, um sicherzustellen, dass der Tropfen zusammen mit der dazugehörigen Membranstruktur vollständig mikroskopiert werden kann. Wie in Abbildung 7.1a) dargestellt, werden dazu mithilfe eines Scienion Spotters (*Scienion Spotter sciFLEXARRAYER S3*) und einer Dosierkapillare (*PDC 90 Piezo Dispense Capillary, S3*) mehrere Tropfen hintereinander auf die Membran aufgetragen, wobei jeder Tropfen ein Volumen von etwa 400 pl hat. Als Tropfenflüssigkeit wird eine Pufferlösung verwendet, in der der Fluoreszenzfarbstoff *Oregon Green®488* (*Oregon Green®488 Maleimide*, Thermo Fisher, O6034) gelöst ist. Anschließend wird die Probe bei 50 °C für zwei Stunden in einem Ofen getrocknet und danach mit dem Zeiss Immersionsöl *Immersol 518 F* beträpelt. Durch diese doppelte Anfärbung mit zwei unterschiedlichen Fluoreszenzfarbstoffen können bei der darauffolgenden Konfokalmikroskopie zwei verschiedene Aspekte erfasst werden. Zum einen ermöglicht die Wahl einer Anregungswellenlänge von 488 nm die Aufnahme eines

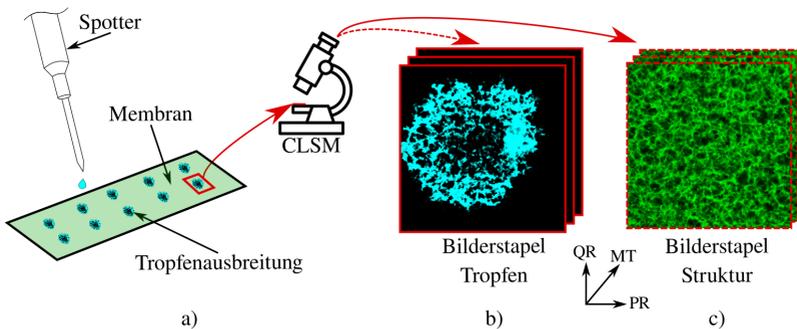


Abbildung 7.1: In a) ist der experimentelle Auftrag von Tropfen auf eine zuvor mit dem Fluoreszenzfarbstoff *Alexa Fluor®555* präparierte Membran dargestellt. In der Tropfenflüssigkeit ist der Fluoreszenzfarbstoff *Oregon Green®488* gelöst. Durch diese doppelte Anfärbung der Membran können anschließend mithilfe eines Konfokalmikroskops (CLSM) sowohl ein in b) gezeigter dreidimensionaler Bilderstack der von dem Tropfen benetzten Membran als auch ein in c) abgebildeter zweiter Bilderstack der dazugehörigen Membranstruktur aufgenommen werden. Somit ist es möglich, die Ausbreitung des Tropfens sowohl in der lateralen Ebene entlang der Produktionsrichtung (PR) und quer dazu (QR) als auch über die Dicke der Membran (MT) hinweg darzustellen.

dreidimensionalen Bilderstapels der von dem Tropfen benetzten Membran, wie in Abbildung 7.1b) dargestellt. Zum anderen kann durch die Wahl einer Anregungswellenlänge von 555 nm ein dreidimensionaler Bilderstapel der zugehörigen Membranstruktur aufgenommen werden, wie in Abbildung 7.1c) ersichtlich. In dieser Arbeit wurde die Tropfenausbreitung in den drei verschiedenen Membranproben H, I und J untersucht. Für die Probe H wurden insgesamt zwölf Tropfenexperimente durchgeführt, während für I und J jeweils neun Experimente realisiert wurden. Die wesentlichen Informationen zur Rekonstruktion der Membranstrukturen sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

7.2.2 Computergestützte Auswertung

Für die computergestützte Auswertung der experimentellen Untersuchung der Tropfenausbreitung in porösen Diagnostikmembranen, wie sie im vorherigen Abschnitt erläutert wurde, ist zunächst die Erstellung eines digitalen Abbilds sowohl der mikroskopierten Membranstruktur als auch des mikroskopierten Tropfens erforderlich. Die Rekonstruktion der Membranstruktur erfolgt gemäß der Methode, die in Abschnitt 3.1.2 beschrieben wurde, wobei nicht wie üblich die komplette Membrandicke abgebildet wird, sondern lediglich der rechteckige Bereich, der die vom Tropfen benetzte Membranstruktur umfasst. Die Rekonstruktion des Tropfens wird gemäß der folgenden Bearbeitungsschritte durchgeführt, die anhand eines einzelnen Bildes aus dem CLSM-Bilderstapel in Abbildung 7.2 veranschaulicht werden.

Ausgehend von der CLSM-Aufnahme aus Abbildung 7.2a) wird zunächst der Bildkontrast angepasst. Das resultierende Bild in Abbildung 7.2b) wird dann einer nachfolgenden Bearbeitung unterzogen, bei der ein dreidimensionaler Medianfilter mit einem kubischen Strukturelement der Größe $762\text{ nm} \times 762\text{ nm} \times 762\text{ nm}$ angewendet wird. Wie in Abbildung 7.2c) zu sehen ist, zielt dieser Schritt darauf ab, Rauscheffekte zu minimieren, die während der Mikroskopie aufgetreten sind. Nachfolgend wird das Bild unter Verwendung des in der *ImageJ*-Erweiterung *FeatureJ* [102] enthaltenen *Canny-Algorithmus* so segmentiert, dass alle erkannten Kanten den Graustufenwert 255 aufweisen, während alle anderen

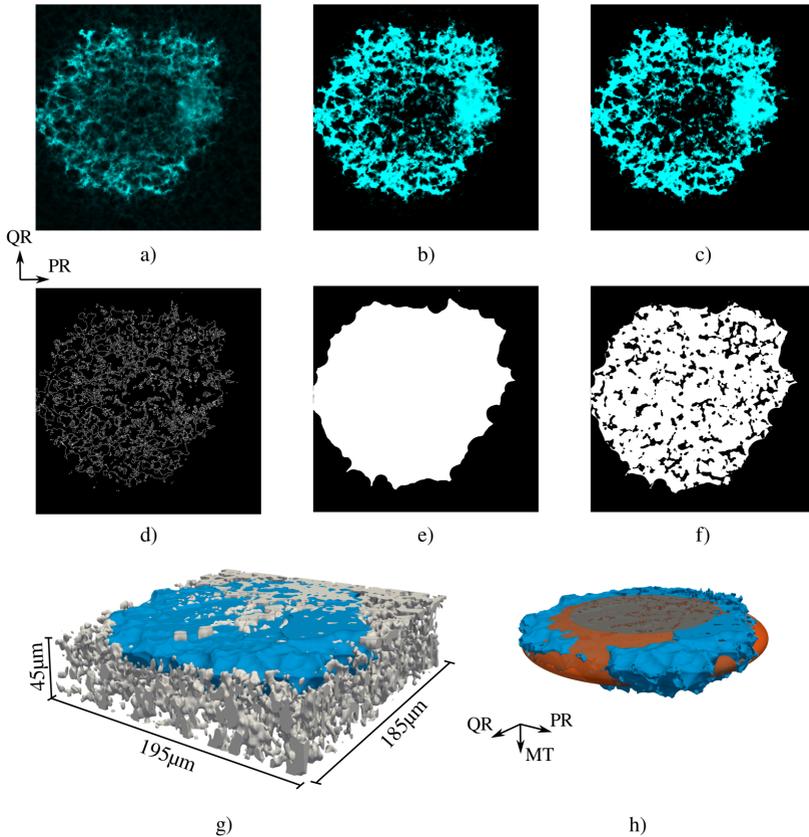


Abbildung 7.2: Abbildungen a) bis f) zeigen die einzelnen Schritte der Bildverarbeitung zur Segmentierung des CLSM-Bilderstapels des aufgetragenen Tropfens, wobei ein exemplarisches Bild in der lateralen Ebene (in Produktionsrichtung (PR) und quer zur Produktionsrichtung (QR)) dargestellt wird. Ausgangspunkt ist das in a) gezeigte mikroskopierte Bild. Zuerst erfolgt in b) eine Anpassung des Bildkontrasts. Anschließend wird in c) ein dreidimensionaler Medianfilter angewendet, um Rauscheffekte zu minimieren. Unter Verwendung des *Canny-Algorithmus* wird die benetzte Membranoberfläche erkannt, was zu dem in d) gezeigten binären Bild führt. Danach wird in e) der Bereich zwischen den erkannten Kanten unter Beibehaltung der äußeren Tropfenform gefüllt, um in f) schließlich die zur Bildausschnitt passende, ebenfalls mikroskopierte Membranstruktur zu subtrahieren. Durch das Zusammenführen des Bilderstapels entlang der Membrantiefe (MT) wird in g) ein dreidimensionales Abbild sowohl des Tropfens als auch der dazugehörigen Membranstruktur gezeigt, wobei in h) der Tropfen (blau) sowie das an den Tropfen angepasste Ellipsoid (orange) dargestellt ist.

Pixel den Wert 0 haben (siehe Abbildung 7.2d)). An dieser Stelle ist anzumerken, dass die segmentierten Kanten im dreidimensionalen Fall die intrinsische Membranoberfläche repräsentieren, die vom aufgetragenen Tropfen benetzt wurde. Um daraus ein dreidimensionales Abbild des Tropfens zu erstellen, wird zunächst der *Closing-Algorithmus* aus der *ImageJ*-Erweiterung *3D Suite* [103] angewendet. Das Ziel ist es, den Raum zwischen der erkannten Membranoberfläche zu füllen, dabei jedoch die äußere Form des Tropfens bestmöglich zu erhalten. Dabei zeigt sich, dass die Verwendung eines kugelförmigen Strukturelements mit einem Radius von $7,17 \mu\text{m}$ im optischen Vergleich die besten Ergebnisse liefert (siehe Abbildung 7.2e)). Im letzten Schritt wird die zur Bildausschnitt passende, ebenfalls mikroskopierte Membranstruktur vom segmentierten Tropfen subtrahiert (siehe Abbildung 7.2f)). Der resultierende segmentierte Bilderstapel wird in ein dreidimensionales voxelbasiertes Gebiet umgewandelt, was den in Abbildung 7.2g) gezeigten digitalen Zwilling des Tropfens mit der dazugehörigen Membranstruktur ergibt. Für die Bildbearbeitungsschritte wurde die Bildbearbeitungssoftware *ImageJ* 1.53 [43] verwendet. Für den abschließenden Schritt der Umwandlung in ein dreidimensionales voxelbasiertes Abbild wird die Simulationssoftware *PACE3D* angewendet.

Um quantitative Informationen über das Ausbreitungsverhalten des Tropfens zu erhalten, wird ein Ellipsoid bestimmt, das den Tropfen am besten repräsentiert. Dazu wird der Trägheitstensor des digitalen Zwillings des Tropfens gemäß Gleichung 4.3 berechnet. Nach einer anschließenden Eigenwertzerlegung werden die Hauptachsen des Ellipsoids mithilfe der Gleichungen 4.7, 4.8 und 4.9 ermittelt. Das ermittelte Ellipsoid und der zugehörige Tropfen sind in Abbildung 7.2h) dargestellt. Aufbauend darauf kann mit den Gleichungen 4.11, 4.12 und 4.13 die laterale Tropfenausbreitung in Produktionsrichtung $\bar{b}_{T,PR}$ und quer dazu $\bar{b}_{T,QR}$ sowie die Ausbreitung entlang der Membrantiefe $\bar{b}_{T,MT}$ ermittelt werden.

7.2.3 Auswahl experimenteller Datensätze

In Abbildung 7.3 sind die Ergebnisse der experimentellen Untersuchung zur Tropfenausbreitung dargestellt. Zunächst wird das ermittelte Tropfenvolumen

und die Ausbreitung in die Membrantiefe für die drei Membranproben H, I und J dargestellt. Hierbei wird für jeden betrachteten Parameter pro Probe sowohl jedes einzelne Experiment dargestellt als auch der daraus detektierte Mittelwert, ergänzt um die zugehörige Standardabweichung in Form von Fehlerbalken. Abbildung 7.3a) stellt das aus dem digitalen Zwilling ermittelte Tropfenvolumen V_T dar, welches durch die Summation aller Voxel berechnet wird. Für die Membranprobe H wird ein mittleres Tropfenvolumen von 399,8 pl mit einer relativen Standardabweichung $SD_{V,H}$ von 11,6 % erfasst. Dies zeigt nicht nur eine ausgezeichnete Übereinstimmung mit dem vorgegebenen Tropfenvolumen von 400 pl, sondern auch, dass die Standardabweichung in einem akzeptablen Bereich liegt. Bei der Untersuchung der Proben I und J zeigt sich hingegen, dass der mittlere Wert des Tropfenvolumens mit 289 pl bzw. 320 pl signifikant vom aufgetragenen Tropfenvolumen von 400 pl abweicht. Zudem weisen diese Proben im Vergleich zu H mit relativen Standardabweichungen von $SD_{V,I} = 23,3\%$ und $SD_{V,J} = 19,1\%$ deutlich höhere experimentelle Streuungen auf. Diese Tendenz setzt sich bei der Analyse der Tropfenausbreitung in die Membrantiefe $\bar{b}_{T,MT}$ fort (siehe Abbildung 7.3b)). Für Probe H besteht lediglich eine geringe relative

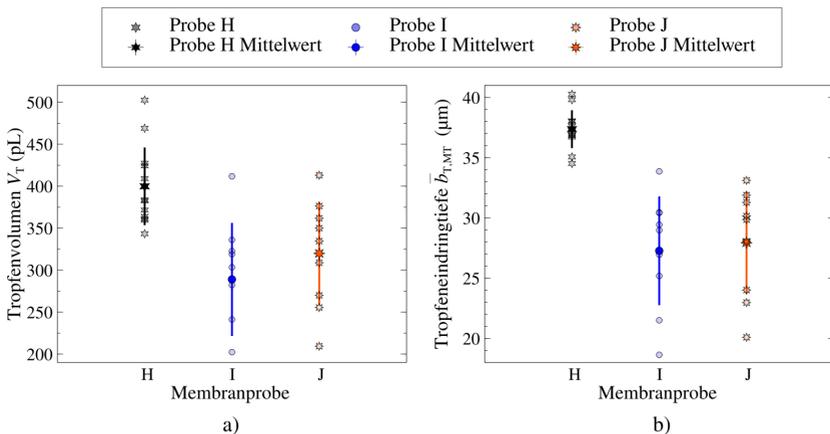


Abbildung 7.3: Auswertung der experimentellen Untersuchung der Tropfenausbreitung in den Membranproben H, I und J, wobei in a) das Tropfenvolumen V_T und in b) die Ausbreitung $\bar{b}_{T,MT}$ in die Membrantiefe (MT) gezeigt wird.

Standardabweichung von $SD_{\bar{b}_{T,MT,H}} = 4,2\%$, während sich für die Proben I und J die Werte von $SD_{\bar{b}_{T,MT,I}} = 16,6\%$ und $SD_{\bar{b}_{T,MT,J}} = 15,3\%$ ergeben. Angesichts der erheblichen Streuungen bei weiteren Parametern innerhalb der Experimentenreihen von I und J werden für die nachfolgende Analyse der Tropfenausbreitung ausschließlich die zwölf Experimente der Probe H berücksichtigt.

7.2.4 Analyse der anisotropen Tropfenausbreitung

Da in Abschnitt 6.3.3 deutlich wurde, dass eine strukturelle Anisotropie einen signifikanten Einfluss auf die Flüssigkeitsausbreitung während des Wickingprozesses ausübt, soll im Folgenden untersucht werden, ob in der lateralen Ebene der Probe H eine strukturelle Anisotropie existiert und inwieweit diese das Ausbreitungsverhalten des aufgetragenen Tropfens beeinflusst.

Dazu werden in Abbildung 7.4 die Auswertungen der experimentellen Tropfenausbreitung und der dazugehörigen Membranstruktur der Membranprobe H gezeigt. Darin wird das Verhältnis der lateralen Tropfenausbreitung $\bar{b}_{T,PR}/\bar{b}_{T,QR}$ bezüglich der Verhältnisse der richtungsabhängigen Struktureigenschaften der Tortuosität τ , der Permeabilität K und des effektiven Porenradius r_{eff} gezeigt. Es ist zunächst ersichtlich, dass für alle untersuchten Parameter eine relative Standardabweichung von unter 5,5 % vorliegt. Dies unterstreicht die Validität des experimentellen Aufbaus und der computergestützten Auswertung dieser Membranprobe.

Der in den Abbildungen 7.4a), 7.4b) und 7.4c) dargestellte grün schraffierte Bereich sollte, basierend auf den in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnissen über die Auswirkungen einer strukturellen Anisotropie auf die Flüssigkeitsausbreitung in porösen Membranen, den Zonen entsprechen, in denen sich die Verhältnisse der Tropfenausbreitung zu den strukturellen Eigenschaften manifestieren. Folglich sollte eine niedrigere Tortuosität oder ein niedrigerer effektiver Porenradius eine bevorzugte Ausbreitung entlang dieser Richtung bewirken, während dies bei der Permeabilität umgekehrt zu erwarten ist. Die Analyse der Tortuosität und Permeabilität bestätigt, wie bei den bisher betrachteten realen Membranstrukturen, dass alle zwölf Membranstrukturen entlang der Produktionsrichtung niedrigere

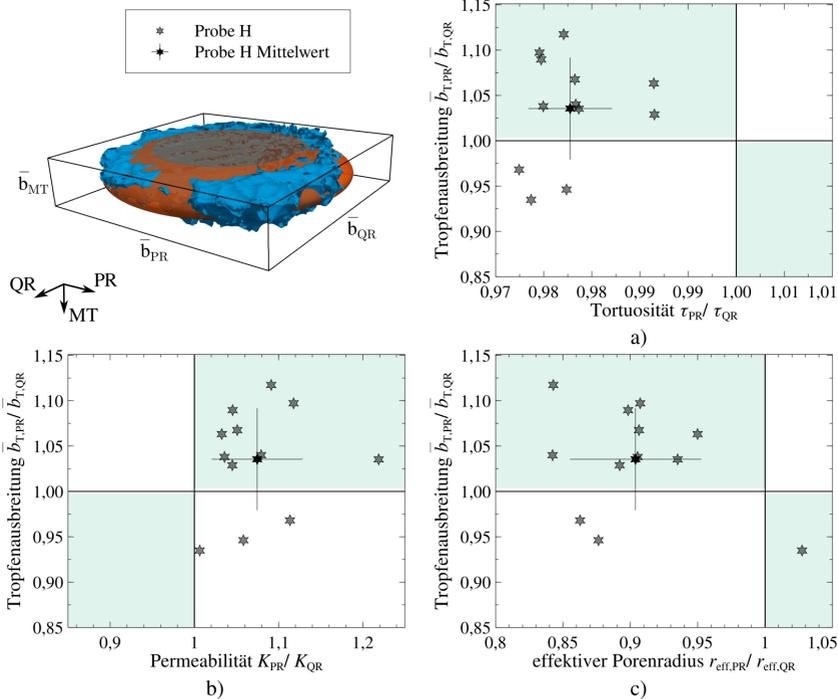


Abbildung 7.4: Gegenüberstellung des Verhältnisses der Tropfenausbreitung $\bar{b}_{T,PR} / \bar{b}_{T,QR}$ entlang (PR) und quer zur (QR) zur Produktionsrichtung bezüglich dem Verhältnis der in a) gezeigten Tortuosität, in b) der Permeabilität und in c) des effektiven Porenradius.

Tortuositätswerte beziehungsweise höhere Permeabilitätswerte aufzeigen. Beim Vergleich der Tropfenausbreitung in den zwölf Experimenten ist bei neun eine stärkere Ausbreitung in Produktionsrichtung im Vergleich zur Querrichtung festzustellen. Bei den verbleibenden drei Experimenten zeigt sich ein entgegengesetztes Ausbreitungsverhalten. In Abbildung 7.4c) wird das Verhältnis der effektiven Porenradien zur Tropfenausbreitung betrachtet. Eine Erklärung für das beobachtete Verhalten in einem der zuvor erwähnten drei Experimente könnte darin liegen, dass in dieser speziellen Membranstruktur quer zur Produktionsrichtung ein kleinerer effektiver Porenradius $r_{eff,QR}$ existiert. Dies führt entlang

dieser Richtung zu einem erhöhten Kapillardruck und kann somit eine Erklärung für eine verstärkte Ausbreitung $\bar{b}_{T,QR}$ sein. Für die zwei verbleibenden Experimente liefern die Strukturparameter keine Erklärung für das Vorliegen von $\bar{b}_{T,QR} > \bar{b}_{T,PR}$.

Diese experimentelle Untersuchung des Zusammenhangs zwischen Tropfenausbreitung und richtungsabhängigen Strukturparametern ergibt, dass sich das richtungsabhängige Ausbreitungsverhalten des Tropfens am besten durch den gemäß der Methode aus Abschnitt 6.3 berechneten effektiven Porenradius erklären lässt. Der Grund dafür ist, dass ein kleinerer effektiver Porenradius zu einem erhöhten Kapillardruck und somit zu einer höheren Ausbreitung führt. Es sei jedoch darauf hingewiesen, dass für eine abschließende Aussage weitere Experimente notwendig sind, für die diese Arbeit die notwendigen Methoden liefert.

7.3 Experimentelle Mikroskopie und Analyse des Linienauftrags

Die entwickelten experimentellen und computergestützten Methoden zur Untersuchung der Tropfenausbreitung tragen entscheidend zur Analyse der Linienauftragung auf porösen Diagnostikmembranen im nachfolgenden Kapitel bei. Dieser Ansatz steht im Vergleich zu den zuvor durchgeführten Tropfenuntersuchungen deutlich näher an der praktischen Anwendung der Präparation einer Test- oder Kontrolllinie auf einer Diagnostikmembran in einem Lateral-Flow-Test.

7.3.1 Experimenteller Aufbau

Der nachfolgend beschriebene experimentelle Aufbau wurde verwendet, um den Linienauftrag auf einer porösen Diagnostikmembran zu untersuchen und diesen mit den strukturellen Eigenschaften der Membran in Verbindung zu setzen.

Um die Präparation der Test- und Kontrolllinie nachzubilden, wird mit einem Spotter, wie in Abbildung 7.5a) dargestellt, eine gleichmäßige Linie auf eine

Diagnostikmembran aufgetragen. Eine Lösung wird mit einer konstanten Auftragsrate von $1 \mu\text{l}/\text{cm}$ auf die Diagnostikmembran aufgezogen. Als Auftragsfluid wird eine Pufferlösung verwendet, in der der Fluoreszenzfarbstoff *Oregon Green@488* gelöst ist. Die anschließende Trocknung in einem Ofen bei 50°C für zwei Stunden, gefolgt von der Benetzung mit dem Zeiss Immersionsöl *Immersol 518 F*, ermöglicht die Mikroskopie des in Abbildung 7.5b) rot hervorgehobenen Bereichs mittels eines Konfokalmikroskops. Dies ermöglicht die Erstellung eines dreidimensionalen Abbilds der aufgetragenen Linie, wie es in Abbildung 7.5d) gezeigt wird. Dieser Vorgang wird sowohl entlang der Produktionsrichtung (PR) als auch quer dazu (QR) durchgeführt. Es ist hervorzuheben, dass in den CLSM-Aufnahmen der Linien nicht die Pufferlösung selbst abgebildet wird, sondern vielmehr die intrinsische Membranoberfläche, die von der aufgetragenen Lösung und dem darin enthaltenen Fluoreszenzfarbstoff benetzt

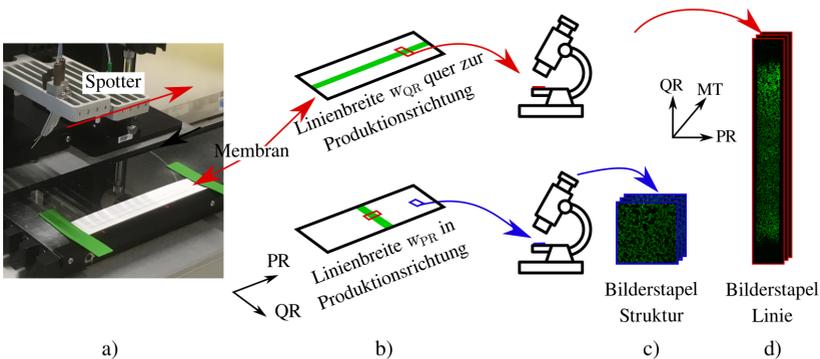


Abbildung 7.5: Mithilfe eines Spotter-Geräts, wie es in Abbildung a) dargestellt ist, wird ein gleichmäßiger Auftrag von gelöstem Fluoreszenzfarbstoff sowohl entlang (PR) als auch quer (QR) zur Produktionsrichtung der Membran durchgeführt. Anschließend wird ein roter Ausschnitt, wie in Abbildung b) gezeigt, unter Verwendung eines Konfokalmikroskops mikroskopiert. Dies ermöglicht die Erzeugung eines entlang der Membrantiefe (MT) dreidimensionalen Bilderstapels der gezogenen Linie, wie in Abbildung d) veranschaulicht. Darüber hinaus wird ein in b) blau markierter repräsentativer Ausschnitt in unmittelbarer Nähe der Linie mikroskopiert, um einen in c) gezeigten Bilderstapel der Membranstruktur zu erfassen. Dies ermöglicht es, die strukturellen Eigenschaften mit dem Linienauftrag zu verknüpfen.

wurde. Zusätzlich wird, wie in Abbildung 7.5b) in blau dargestellt, ein repräsentativer Ausschnitt der Membran nahe der aufgetragenen Linie entnommen. Anschließend wird mit der in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen Methode ein dreidimensionaler Bilderstapel der Membranstruktur erstellt, wie in Abbildung 7.5c) gezeigt.

Die experimentellen Untersuchungen sowie die CLSM-Aufnahmen wurden von der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* in Göttingen realisiert. In der Analyse zum Linienauftrag wurden die vier verschiedenen Membranproben K, L, M und N untersucht. Bei jeder Probe wurde eine Linie sowohl entlang der Produktionsrichtung als auch quer dazu aufgetragen und mit einer Bildauflösung von 320 $\mu\text{m}/\text{Voxel}$ mikroskopiert. Zusätzlich wurden für jede Probe CLSM-Aufnahmen der Membranstruktur mit einer Bildauflösung von 160 nm/Voxel gemacht, wie in Abbildung 7.5b) blau dargestellt. Tabelle 3.1 fasst die wesentlichen Informationen zur Rekonstruktion dieser Membranstrukturen zusammen.

7.3.2 Computergestützte Auswertung

Um quantitative Erkenntnisse aus der zuvor beschriebenen experimentellen Untersuchung des Linienauftrags zu gewinnen, ist eine Auswertung der gezogenen Linien in den Bilderstapeln erforderlich, wobei der Fokus auf der Breite der Linie quer zur Auftragsrichtung liegt. Dies wiederum erfordert eine eindeutige Definition der diffusen Außenkante der mikroskopierten Linie (siehe Abbildung 7.6a)). Um dies zu realisieren, durchlaufen die CLSM-Aufnahmen der Linien unter Anwendung des Bildbearbeitungsprogramms *ImageJ* die folgenden Bildbearbeitungsschritte, wobei diese in Abbildung 7.6 anhand eines Beispielbildes aus dem gesamten Bilderstapel veranschaulicht werden. Ausgehend vom Graustufenbild in Abbildung 7.6a), welches auf der CLSM-Aufnahme basiert, wird zunächst ein Gaußfilter mit einer festgelegten Standardabweichung von $\sigma = 1,92\mu\text{m}$ angewendet, um vorhandene Rauscheffekte zu reduzieren, wie in Abbildung 7.6b) gezeigt. Es ist zu beachten, dass der Schwerpunkt auf der Detektion der Außenkante der Linie liegt und die Wahl der Größe von σ in diesem Kontext keinen signifikanten Einfluss auf das Ergebnis hat. Auf dieser Grundlage

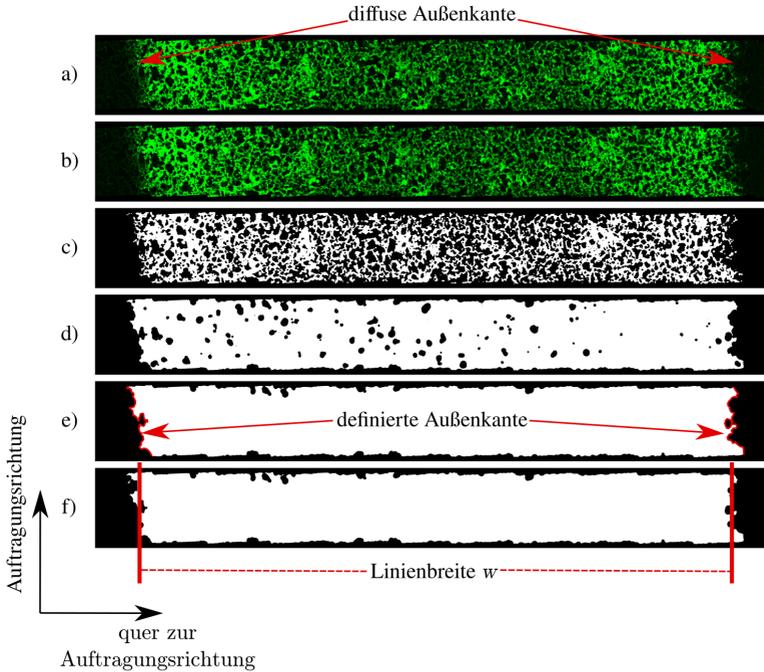


Abbildung 7.6: Bildbearbeitungsschritte für die quantitative Auswertung der experimentellen Untersuchung der Linienauftragung, exemplarisch dargestellt an einer 2D-Aufnahme eines gesamten 3D-Bilderstapels. Ausgehend vom CLSM-Graustufenbild in a), in dem keine klar definierte Linienbreite erkennbar ist, wird zur Minimierung von Rauschereffekten zunächst wie in b) gezeigt ein Gaußfilter mit einer festgelegten Standardabweichung von $\sigma = 1,92\mu\text{m}$ angewendet. Basierend darauf wird durch den Einsatz des *Otsu-Algorithmus* das Bild wie in c) ersichtlich binarisiert, wobei die benetzte intrinsische Membranoberfläche weiß und alle anderen Bereiche schwarz dargestellt sind. Ein *Closing-Algorithmus* wird angewendet, um, wie in d) gezeigt, den Bereich zwischen der benetzten Membranoberfläche zu füllen. Anschließend werden in e) verbleibende Hohlräume mit dem *Fill Holes-Algorithmus* komplett geschlossen, was eine eindeutige Detektion der Außenkante ermöglicht. Die Messung dieser Außenkante wird in f) visualisiert.

erfolgt mit dem in der Software *ImageJ* implementierten *Otsu-Algorithmus* [41] eine Unterteilung in die intrinsische Membranoberfläche, die von der Pufferlösung erreicht wurde, und die übrigen Bereiche. Dadurch entsteht das binäre Bild,

das in Abbildung 7.6c) gezeigt wird, wobei die benetzte Membranoberfläche weiß und alle anderen Bereiche schwarz dargestellt sind. Um eine klar definierte Außenkante der Linienausbreitung zu erhalten, wird der *Closing-Algorithmus* der *ImageJ*-Erweiterung *3D Suite* [103] angewendet, um den Bereich zwischen der detektierten Membranoberfläche zu füllen, wie in Abbildung 7.6d) gezeigt. Nachfolgend werden verbleibende Hohlräume durch den *Fill Holes-Algorithmus* vollständig geschlossen, was zu einem digitalen Abbild der Ausbreitung der Pufferlösung führt, wie es in Abbildung 7.6e) dargestellt ist. Um die Linienbreite zu messen, werden in jedem Bild des Bilderstapels zunächst die Pixel entlang der jeweiligen Außenkante detektiert. Anschließend wird für jede dieser Außenkanten ein Mittelwert der Koordinaten quer zur Auftragsrichtung berechnet. Diese Vorgehensweise resultiert in der in Abbildung 7.6f) dargestellten Messung der Linienbreite w .

7.3.3 Analyse des richtungsabhängigen Linienauftrags

Nachdem sich sowohl beim Wickingverhalten (vgl. Kapitel 6.3.3) als auch bei den Tropfenexperimenten (vgl. Kapitel 7.2.4) ein richtungsabhängiges Ausbreitungsverhalten gezeigt hat, stellt sich nun die Frage, ob dies auch beim Linienauftrag der Fall ist. Deshalb wird der Unterschied in der resultierenden Linienbreite in Produktionsrichtung w_{PR} und quer zur Produktionsrichtung w_{QR} untersucht. Gemäß Urusov et al. [104] erzeugen in einem Lateral-Flow-Test nur die obersten $10\ \mu\text{m}$ der Diagnostikmembran ein sichtbares Farbsignal für die Test- und Kontrolllinie. Daher konzentriert sich die folgende Analyse ausschließlich auf diesen Bereich. Abbildung 7.7a) zeigt die dreidimensionale Abbildung einer aufgetragenen Linie, wobei der für das Signal entscheidende Bereich hervorgehoben wird. Innerhalb dieser $10\ \mu\text{m}$ wird entlang der Membrandicke eine mittlere Linienbreite \bar{w} zusammen mit der dazugehörigen Standardabweichung SD_w berechnet. Die Ergebnisse dieser gemittelten Linienbreite, sowohl in Produktionsrichtung (\bar{w}_{PR}) als auch quer dazu (\bar{w}_{QR}), sind in Abbildung 7.7b) dargestellt. Zunächst wird deutlich, dass die Linienbreite innerhalb des betrachteten Bereichs entlang

der Membrandicke gleichmäßig verteilt ist, was durch die kaum sichtbaren Fehlerbalken, die die Standardabweichung SD_w repräsentieren, bestätigt wird. Die relative Standardabweichung $\frac{SD_w}{\bar{w}} \times 100\%$ bleibt stets unter 1%. Des Weiteren ist bei allen vier Membranproben erkennbar, dass immer $\bar{w}_{PR} > \bar{w}_{QR}$ gilt. Dies impliziert, dass, trotz gleichbleibender Methodik beim Linienauftrag sowohl in

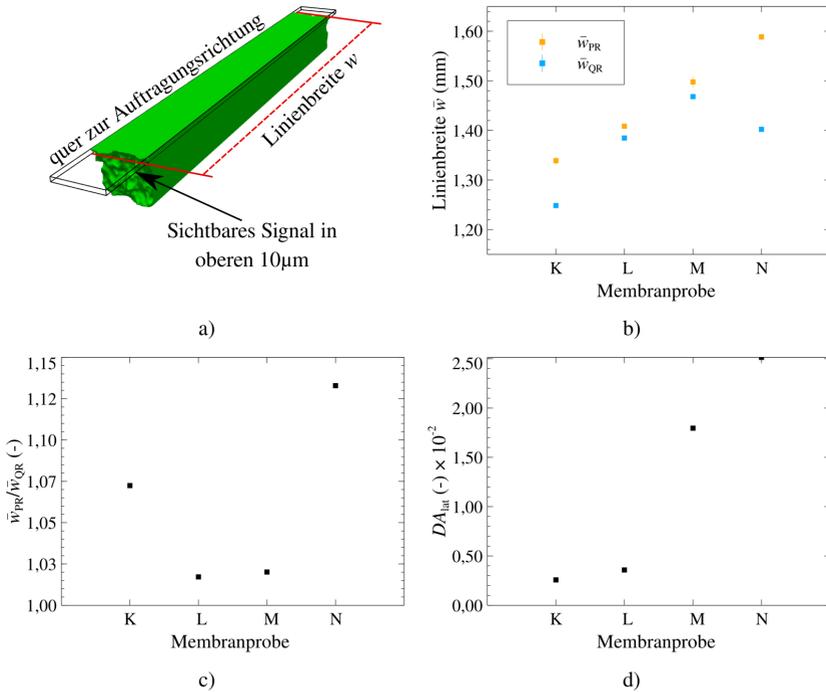


Abbildung 7.7: In a) wird ein dreidimensionaler Zwilling des experimentellen Linienauftrags auf einer Membranstruktur abgebildet, wobei der obere Bereich von 10 μm , der entscheidend für das Farbsignal in einem Lateral-Flow-Test ist, hervorgehoben wird. In b) werden die Linienbreiten \bar{w} für die vier untersuchten Membranproben innerhalb dieses Bereichs sowohl in Produktionsrichtung (PR) als auch quer dazu (QR) aufgezeichnet. In c) wird das zugehörige Verhältnis der Linienbreite dargestellt. Abbildung d) zeigt die strukturelle Anisotropie DA_{lat} , die in den rekonstruierten Strukturaufnahmen für jede Membranprobe in Bezug auf die laterale Ebene gemessen wurde.

Produktionsrichtung als auch quer dazu, die entstehende Linienbreite in Produktionsrichtung konstant größer ist. Das Verhältnis zwischen \bar{w}_{PR} und \bar{w}_{QR} , wie in Abbildung 7.7c) dargestellt, schwankt zwischen 1,017 und 1,133. Qualitativ lässt sich dies durch die computergestützte Messung der strukturellen Anisotropie in der lateralen Ebene DA_{lat} der rekonstruierten Membranproben begründen, wie in Abschnitt 4.1.3 beschrieben und nach Gleichung 5.9 berechnet. Dabei wird in Abbildung 7.7d) ersichtlich, dass bei allen vier Membranproben $DA_{lat} > 0,0$ ist. Dies lässt darauf schließen, dass die Membranstrukturen, ähnlich wie bei den in den vorherigen Kapiteln vorgestellten realen Membranproben, eine leichte strukturelle Ausrichtung entlang der Produktionsrichtung aufweisen, was wiederum zu der erhöhten Linienbreite entlang der Produktionsrichtung führt.

7.3.4 Experimentelle Struktur-Linienbreite Analyse

Im Gegensatz zur vorherigen Untersuchung des anisotropen Ausbreitungsverhaltens jeder Membranprobe, wird nun jedes Experiment isoliert betrachtet und die jeweilige Linienbreite \bar{w} den richtungsabhängigen Strukturparametern Tortuosität τ , Permeabilität K und dem effektiven Porenradius r_{eff} (vgl. Kapitel 6.3) gegenübergestellt. In diesem Zusammenhang werden für jede Membranprobe die jeweiligen Richtungen miteinander verglichen. Das bedeutet, die Linienbreite \bar{w}_{PR} wird mit den entsprechenden Strukturparametern τ_{PR} , K_{PR} und $r_{eff,PR}$ verglichen, während gleichzeitig \bar{w}_{QR} mit τ_{QR} , K_{QR} und $r_{eff,QR}$ in Beziehung gesetzt wird. Daraus ergeben sich insgesamt acht experimentell ermittelte Datenpunkte. Abbildung 7.8 zeigt die entsprechende Auswertung, bei der die durchschnittliche Linienbreite \bar{w} in Abbildung 7.8a) in Abhängigkeit von der Tortuosität τ , in 7.8b) von der Permeabilität K und in 7.8c) vom effektiven Porenradius r_{eff} dargestellt ist. Die Permeabilität wird anhand der vollständig aufgelösten voxelbasierten Struktur gemäß der Methode in Kapitel 4.1.6 berechnet. In Abbildung 7.8a) zeigt sich, dass mit zunehmender Tortuosität tendenziell eine Zunahme der Linienbreite einhergeht. Abbildung 7.8b) und Abbildung 7.8c) zeigen hingegen, dass höhere Werte für die Permeabilität und den effektiven Porenradius tendenziell

zu einer Abnahme der resultierenden Linienbreite führen. In diesem Zusammenhang ist auffällig, dass das Experiment zur Linienbreite in Produktionsrichtung für die Membranprobe N bei allen drei Strukturparametern im Vergleich zu den übrigen Untersuchungen als Ausreißer auffällt. Um den Trend der Abhängigkeit zwischen der Linienbreite und den Strukturparametern zu verdeutlichen, werden in den Abbildungen 7.8 jeweils lineare Anpassungsfunktionen dargestellt. Der zuvor erwähnte Ausreißer wird bei dieser Anpassung nicht berücksichtigt. Die Wechselwirkung zwischen der Linienbreite und den Struktureigenschaften kann am besten durch den in Abbildung 7.8c) dargestellten Zusammenhang zwischen dem effektiven Porenradius und der Linienbreite erklärt werden. Nach

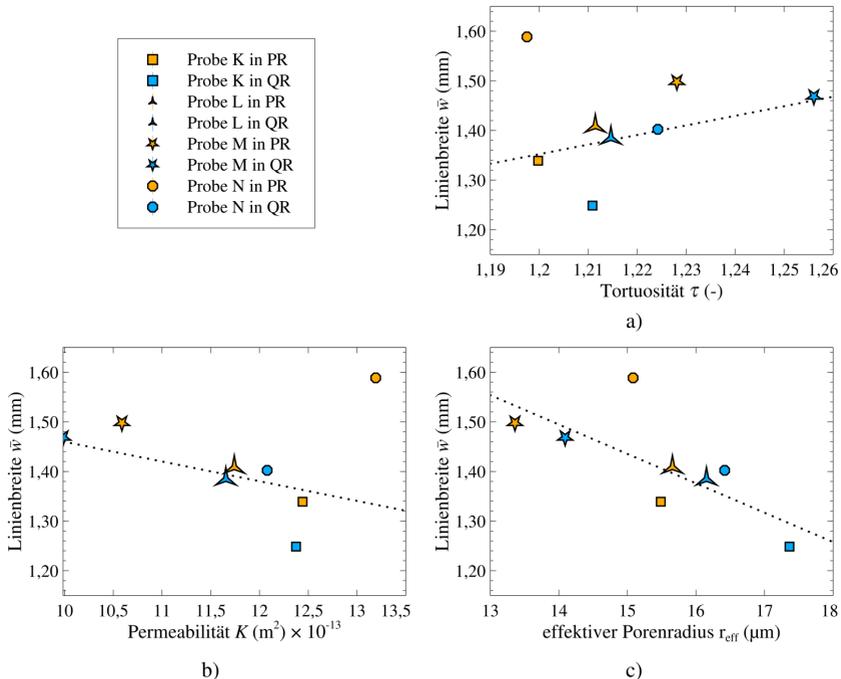


Abbildung 7.8: Für jede der vier Membranproben K, L, M und N werden sowohl entlang der Produktionsrichtung (PR) als auch quer dazu (QR) die gemessene Linienbreite \bar{w} bezüglich der richtungsabhängigen Strukturparameter gezeigt, wobei in a) die Tortuosität τ , in b) die Permeabilität K und in c) der effektive Porenradius r_{eff} betrachtet werden.

Gleichung 6.7 führt ein kleinerer effektiver Porenradius zu einem höheren Kapillardruck, was wiederum nach den hier gewonnenen Erkenntnissen zu einer größeren Linienbreite führt.

Wird diese Erkenntnis auf die in Kapitel 6.5 ermittelten strukturellen Wechselwirkungen übertragen, ergibt sich der in Abbildung 7.9 gezeigte qualitative Trend zwischen der Linienbreite und den Strukturgrößen der Porosität und des Stegradius. Dabei zeigt sich für alle drei Strukturgrößen, dass eine Abnahme der Porosität und des mittleren Stegradius zu einer Zunahme der Linienbreite führt. Es sollte jedoch beachtet werden, dass dies lediglich dazu dient, einen qualitativen Trend zu verdeutlichen, und nicht als quantitative Vorhersage angesehen werden kann. Um dies zu realisieren, bedarf es einer größeren Stichprobe von Experimenten.

7.4 Zusammenfassung und Diskussion

Um ein verbessertes Verständnis der vorliegenden Mechanismen bei der Präparation der Test- und Kontrolllinie in einem Lateral-Flow-Test zu erlangen, wurde in diesem Kapitel der Zusammenhang zwischen den strukturellen Eigenschaften poröser Membranen und dem Ausbreitungsverhalten von darauf aufgetragenen Flüssigkeiten untersucht. Im ersten Schritt wurde dazu von der Firma *Sartorius Stedim Biotech GmbH* eine Methode entwickelt, welche unter Einsatz der Konfokalmikroskopie eine dreidimensionale Detektion der Flüssigkeitsausbreitung von Tropfen mit einem Volumen von 400 pl ermöglicht und zusätzlich die dazugehörige Membranstruktur mikroskopiert werden kann. Durch die anschließende Erstellung eines dreidimensionalen digitalen Zwillings der Ausbreitung des Tropfens und der dazugehörigen Membranstruktur konnte in ersten experimentellen Untersuchungen gezeigt werden, dass bei zehn von zwölf Experimenten ein anisotropes Flüssigkeitsausbreitungsverhalten vorliegt, welches sich strukturell mit dem für den Kapillardruck entscheidenden effektiven Porenradius begründen lässt. Eine kleinere effektive Porengröße r_{eff} führt zu einer bevorzugten Ausbreitung der Flüssigkeit entlang dieser Richtung. Zudem zeigt sich in neun

von zwölf Fällen, dass die Flüssigkeitsausbreitung entlang der Produktionsrichtung gegenüber der Querrichtung größer ist.

Die entwickelten experimentellen und computergestützten Methoden zur Untersuchung der Tropfenausbreitung wurden anschließend genutzt, um die Ausbreitung einer auf die poröse Diganostikmembran aufgetragenen Linie zu untersuchen. Dieser Ansatz steht im Vergleich zu den zuvor durchgeführten Tropfenuntersuchungen deutlich näher an der praktischen Anwendung der Präparation

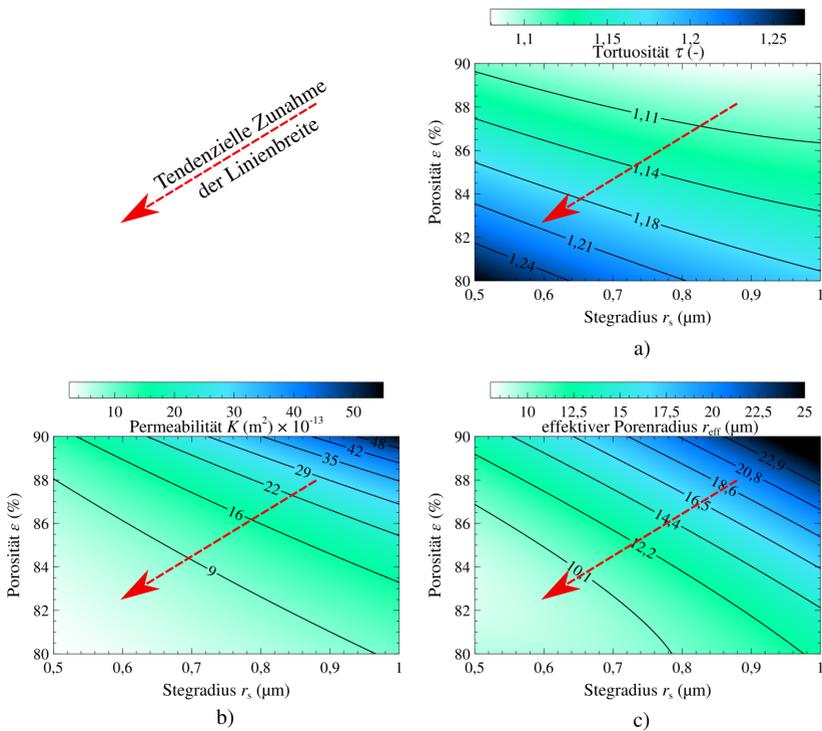


Abbildung 7.9: Die Erkenntnisse zum Linienauftrag auf porösen Membranen werden auf die strukturellen Wechselwirkungen (vgl. Kapitel 6.5) übertragen. Die rote Linie in der Abbildung repräsentiert den qualitativen Trend einer Verbreiterung der resultierenden Linie. In den Abbildungen a), b) und c) werden die Wechselwirkungen zwischen der Tortuosität τ , der Permeabilität K und dem effektiven Porenradius r_{eff} in Abhängigkeit von der Porosität ϵ und dem mittleren Stegradius r_s dargestellt.

einer Test- oder Kontrolllinie. Bei diesem Ansatz wurde im Gegensatz zu den Tropfenausbreitungen nicht die zur Benetzung zugehörige Membranstruktur betrachtet, sondern ein für die Membran repräsentativer Ausschnitt. bei dieser Studie wurde die Breite der Linien, die sich bei der Auftragung ergab, für insgesamt vier verschiedene Membranproben experimentell bestimmt. Dies umfasste Messungen sowohl in Produktionsrichtung als auch quer dazu. Bei der Analyse aller Membranproben stellte sich heraus, dass die Linienbreite in Produktionsrichtung durchgängig größer war als quer dazu, was sich durch die strukturelle Auswertung der zugehörigen Membranstrukturen erklären lässt. Dabei zeigte sich, dass bei allen vier Proben eine strukturelle Anisotropie mit $DA_{\text{lat}} > 0,0$ detektiert wurde und zudem der effektive Porenradius r_{eff} in Produktionsrichtung stets einen kleineren Wert aufweist als quer zur Produktionsrichtung. Dieses Ergebnis bestätigt die Tendenz, die sich bereits in den vorangegangenen Untersuchungen der Tropfenausbreitung abgezeichnet hatte. Des Weiteren wurde ein Zusammenhang zwischen den Strukturparametern der Tortuosität, der Permeabilität und des effektiven Porenradius mit der resultierenden Linienbreite festgestellt. Es zeigte sich, dass die Linienbreite mit zunehmender Tortuosität in den durchgeführten Experimenten anstieg. Im Gegensatz dazu führte eine höhere Permeabilität und ein größerer effektiver Porenradius zu einer Verringerung der Linienbreite. Diese Erkenntnisse wurden in Abbildung 7.9 dargestellt, indem sie auf die zuvor ermittelten strukturellen Wechselwirkungen (vgl. Kapitel 6.5) übertragen wurden. Dabei zeigte sich die Tendenz, dass eine Reduzierung der Porosität oder des mittleren Stegradius zu einer Zunahme der Linienbreite beiträgt.

8 Zusammenfassung und Ausblick

8.1 Zusammenfassung

In dieser Arbeit erfolgte eine datengetriebene Analyse poröser Membranen, mit dem Ziel, ein umfassendes Verständnis darüber zu entwickeln, wie die Mikrostruktur die makroskopische Flüssigkeitsausbreitung beeinflusst. Zu diesem Zweck wurden innovative Methoden entwickelt und eingesetzt, um digitale Abbilder der Membranstruktur auf der Mikroskala zu charakterisieren und zu analysieren, wobei insgesamt knapp 500 synthetische und 41 reale Membranstrukturen untersucht wurden. Die dadurch identifizierten charakteristischen Strukturparameter dienten daraufhin dazu, die Flüssigkeitsausbreitung auf der Anwendungsskala darzustellen. Besonderes Augenmerk lag dabei auf dem Wickingverhalten sowie auf dem Ausbreitungsverhalten während der Präparation der Test- und Kontrolllinie.

Zu Beginn wurden Methoden angewandt und entwickelt, um digitale Modelle poröser Membranstrukturen zu erstellen. Besonders hervorzuheben ist der im Zuge dieser Arbeit entwickelte Generierungsalgorithmus, welcher auf der Segmentierung des Porenraums realer Membranstrukturen basiert. Dieser ermöglicht die Erzeugung von synthetischen, detailgetreuen digitalen Abbildern poröser Membranstrukturen, wobei die Strukturparameter individuell angepasst werden können. Die Aufteilung des Porenraums in einzelne Poren wird mittels einer markerbasierten Wasserscheidentransformation realisiert. Die erzeugten digitalen Zwillinge werden daraufhin mit Hilfe von innovativen, datengetriebenen Charakterisierungstechniken auf der Mikroskala untersucht. Hierbei wurde eine

Methode entwickelt, welche, unter Verwendung der zuvor genannten markerbasierten Wasserscheidentransformation, die Erfassung einer strukturellen Anisotropie ermöglicht.

Zur Realisierung einer kosteneffizienten Charakterisierung wurde die Extraktion eines Porennetzwerkmodells (PNM) aus den digitalen Abbildungen poröser Strukturen modelliert. Die anschließende Validierung dieser Extraktion hat bestätigt, dass der Porenraum mittels eines PNM präzise dargestellt werden kann und diese Methode somit eine zeit- und kostensparende Möglichkeit zur Charakterisierung poröser Strukturen bietet. Nachfolgend wurde das entwickelte PNM eingesetzt, um den Einfluss einer strukturellen Anisotropie auf das einphasige Strömungsverhalten zu untersuchen. Es zeigt sich, dass sowohl in synthetischen als auch in realen Membranstrukturen die Permeabilität in Richtung einer strukturellen Anisotropie erhöht ist.

Anschließend wurde der neu entwickelte Generierungsalgorithmus genutzt, um eine umfassende Datenbank von Membranstrukturen zu erstellen. Durch die sorgfältige Untersuchung jeder einzelnen Struktur wurden universelle Funktionen abgeleitet. Auf der Grundlage der Strukturparameter der Porosität und des mittleren Stegradius ermöglichen diese die Vorhersage des geometrischen Porenradius, der spezifischen Oberfläche, der Tortuosität, der Permeabilität und des effektiven Porenradius. Diese Beziehungen zwischen Strukturmerkmalen ermöglichen die Modellierung der Wickingzeit und -geschwindigkeit auf der Anwendungsskala anhand der Porosität und des mittleren Stegradius. Der effektive Porenradius, welcher zur Modellierung des Kapillardrucks in der Membran verwendet wird, wird durch eine innovative Methode ermittelt, die auf der Simulation der Benetzungsprozesse in der Membranstruktur fußt.

Zum Abschluss wurde der Einfluss der Struktur auf die Ausbildung der Test- und Kontrolllinie betrachtet. Das anisotrope Ausbreitungsverhalten eines auf die poröse Membran aufgetragenen Tropfens wurde dazu experimentell und computergestützt analysiert. Ein besonderer Fokus lag dabei darauf, dass sowohl die Tropfenausbreitung als auch die zugehörige Membranstruktur auf der Mikroskala abgebildet werden kann. Es zeigt sich, dass das anisotrope Flüssigkeitsausbreitungsverhalten durch den effektiven Porenradius, der für den Kapillardruck

entscheidend ist, erklärt werden kann, wobei ein kleinerer effektiver Porenradius zu einer bevorzugten Ausbreitungsrichtung führt. Die entwickelten experimentellen und computergestützten Ansätze zur Analyse der Tropfenausbreitung wurden daraufhin eingesetzt, um das Ausbreitungsverhalten einer auf die poröse Diagnostikmembran aufgetragenen Linie zu erforschen. Es stellt sich heraus, dass die Linienbreite in Produktionsrichtung bei allen untersuchten Membrantypen durchgehend größer ist als quer dazu, ein Phänomen, das äquivalent zu den Tropfenuntersuchungen durch den effektiven Porenradius erklärt werden kann. Zudem zeigt sich eine Korrelation zwischen den Strukturparametern der Tortuosität, der Permeabilität, des effektiven Porenradius und der resultierenden Linienbreite. Die Beobachtungen deuten darauf hin, dass eine steigende Tortuosität in den Experimenten zu einer Zunahme der Linienbreite führt. Im Gegensatz dazu resultieren eine erhöhte Permeabilität und ein größerer effektiver Porenradius in einer schmalen Linienbreite. Dieser Trend wurde abschließend mit den zuvor ermittelten strukturellen Zusammenhängen verknüpft, wodurch ein genereller struktureller Einfluss auf die Test- und Kontrolllinie ermittelt werden kann. Zusammenfassend lassen sich die erarbeiteten strukturellen Zusammenhänge und die Struktur-Wicking-Beziehung nutzen, um bei der Entwicklung innovativer Lateral-Flow-Tests (LFTs) die Testzeit und die Fließgeschwindigkeit der Probenflüssigkeit an der Testlinie optimal auf spezifische Anwendungsfälle abzustimmen. Darüber hinaus lässt sich die abgeleitete Beziehung zwischen Membranstruktur und Linienbreite anwenden, um die Präparation der Testlinie zu optimieren.

8.2 Ausblick

Die vorliegende Arbeit hat zu einem fundierten Verständnis der strukturabhängigen Flüssigkeitsausbreitung in porösen Membranen geführt. Basierend auf diesen Erkenntnissen werden im Folgenden Ansätze für weitere Forschungsfragen dargelegt.

In dieser Arbeit wurden zwei Hauptansätze zur Erstellung digitaler Modelle der

porösen Membranstruktur verfolgt: die Rekonstruktion realer Strukturen und die Erzeugung synthetischer Membranstrukturen. Bei den synthetischen Strukturen lag der Schwerpunkt auf der algorithmischen Generierung. Als potenzielle zukünftige Erweiterung könnte die Erstellung digitaler Zwillinge durch die simulative Analyse des Phaseninversionsprozesses als dritte Option in Betracht gezogen werden. Diese Vorgehensweise würde nicht nur die Erstellung von Struktur-Flüssigkeitsausbreitung-Beziehungen ermöglichen, sondern auch die Ausarbeitung umfassender Prozess-Struktur-Flüssigkeitsausbreitung-Beziehungen durch die Variation spezifischer Prozessparameter, wie der chemischen Zusammensetzung oder thermischen Einflussfaktoren, erlauben. Durch Reverse Engineering könnte diese Methode genutzt werden, um die Prozessparameter bei der Produktion gezielt an die gewünschten Eigenschaften der Flüssigkeitsausbreitung anzupassen. Wang et al. haben in [105] bereits simulative Studien zur Phaseninversion unter Verwendung der Phasenfeldmethode durchgeführt, welche als Fundament für weiterführende Forschungsarbeiten dienen könnten.

Weiterhin kann bei der Extraktion des Porennetzwerkmodells eine Optimierung dahingehend durchgeführt werden, dass dem PNM weitere charakteristische Eigenschaften hinzugefügt werden. Dies kann beispielsweise die Charakterisierung der Poren- und Kanalform beinhalten. Darauf aufbauend lässt sich dieses weiterführend einsetzen, um das zweiphasige Strömungsverhalten in Membranstrukturen zu erforschen. Die signifikante Reduktion des Rechenaufwands ermöglicht es, das Benetzungsverhalten bei der Präparation von Test- und Kontrolllinien in den für die Anwendung relevanten Größenordnungen im Millimeterbereich zu simulieren. Dies erlaubt eine direkte Visualisierung des Eindringprozesses der aufgetragenen Flüssigkeit, wie in Abbildung 8.1 illustriert wird.

Weiterführend kann der in dieser Arbeit erstellte Membrandatensatz zukünftig nicht nur um einen umfangreicheren Parameterbereich erweitert werden, sondern auch dazu dienen, wie in [106] mittels maschinellem Lernen zusätzliche quantitative Merkmale und Zusammenhänge zu ermitteln.

Generell lassen sich die in dieser Arbeit angewandten und neu entwickelten Methoden und Arbeitsabläufe auf andere Fragestellungen im Zusammenhang mit porösen Strukturen, wie etwa geschlossenporigen Schaumstrukturen [107], übertragen, um ebenfalls Struktur-Eigenschaft-Beziehungen aufzubauen.

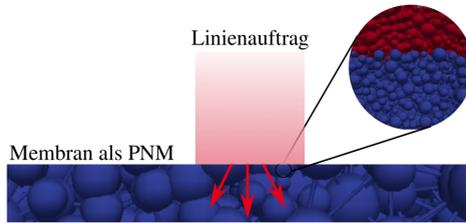


Abbildung 8.1: Schematische Darstellung einer potenziellen zweiphasigen Analyse des Eindringvorgangs mit einem Porennetzwerkmodell während des Linienauftrags.

In der Anwendung werden Diagnostikmembranen oft mit einer Folienverstärkung (engl. backing) versehen, um eine verbesserte mechanische Stabilität zu gewährleisten. Der Phaseninversionsprozess findet direkt auf einer Polymerfolie statt, was zu einer festen Verbindung zwischen der entstehenden Membran und der Folie führt. Diese Verstärkung beeinflusst den Wickingprozess, eine Komponente, die in aktuellen Modellierungen des Wickingprozesses noch nicht berücksichtigt wird. Die Untersuchung dieses Einflusses könnte ein Thema für zukünftige Forschungsarbeiten darstellen.

Die Ausarbeitung von Multiplex-Tests, die gleichzeitig mehrere Krankheitserreger erfassen können, stellt eine wichtige Weiterentwicklung für LFTs dar [108]. Für die effiziente Gestaltung solcher Tests ist insbesondere die Modellierung der Flüssigkeitsbewegungsgeschwindigkeit in den einzelnen Kanälen von Bedeutung, wobei hier eine computergestützte Auslegung der Membrangeometrie Vorteile bringen könnte.

Für eine effektive und nachhaltige Nutzung der entwickelten Methoden und Datensätze empfiehlt sich der Einsatz einer Forschungsdatenmanagement-Plattform. *Kadi4Mat* (Karlsruhe Data Infrastructure for Materials Science) in Verbindung mit dem Workfloweditor *KadiStudio* bietet eine Lösung für das Management der erzeugten Daten, gemäß den FAIR-Prinzipien (Findability, Accessibility, Interoperability, and Reusability) [109]. Durch das Anlegen von Workflows zur Erstellung von Struktur-Eigenschaft-Beziehungen ermöglicht diese Plattform die

Anwendung der entwickelten Verfahren auf zusätzliche poröse Strukturen. Eine Erweiterung der Workflows um weitere innovative Methoden erlaubt darüber hinaus die Entdeckung neuer struktureller Korrelationen.

Literaturverzeichnis

- [1] A. Kelly, “Why engineer porous materials?” *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 364, no. 1838, pp. 5–14, 2006.
- [2] P. Liu and G.-F. Chen, *Porous materials: processing and applications*. Amsterdam [u.a.]: Elsevier, 2014.
- [3] P. Altschuh, “Skalenübergreifende analyse makroporöser membranen im kontext digitaler zwillinge,” Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe, 2020.
- [4] D. Gasperino, T. Baughman, H. V. Hsieh, D. Bell, and B. H. Weigl, “Improving lateral flow assay performance using computational modeling,” *Annual Review of Analytical Chemistry*, vol. 11, pp. 219–244, 2018.
- [5] J. L. Tonkinson and B. A. Stillman, “Nitrocellulose: a tried and true polymer finds utility as a post-genomic substrate,” *Front Biosci*, vol. 7, no. 3, pp. c1–12, 2002.
- [6] M. A. Mansfield, “The use of nitrocellulose membranes in lateral-flow assays,” in *Drugs of abuse: Body fluid testing*. Totowa, NJ: Humana Press, 2005, pp. 71–85.
- [7] J. Rouquerol, D. Avnir, C. W. Fairbridge, D. H. Everett, J. Haynes, N. Pernicone, J. D. Ramsay, K. S. W. Sing, and K. K. Unger, “Recommendations for the characterization of porous solids (technical report),” *Pure and applied chemistry*, vol. 66, no. 8, pp. 1739–1758, 1994.

- [8] B. S. Lalia, V. Kochkodan, R. Hashaikeh, and N. Hilal, "A review on membrane fabrication: Structure, properties and performance relationship," *Desalination*, vol. 326, pp. 77–95, 2013.
- [9] H. Sun, S. Liu, B. Ge, L. Xing, and H. Chen, "Cellulose nitrate membrane formation via phase separation induced by penetration of nonsolvent from vapor phase," *Journal of membrane science*, vol. 295, no. 1-2, pp. 2–10, 2007.
- [10] S. Hong and P. K. Chan, "Simultaneous use of temperature and concentration gradients to control polymer solution morphology development during thermal-induced phase separation," *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 18, no. 2, p. 025013, 2010.
- [11] S. Ghaffari, P. K. Chan, and M. Mehrvar, "Computer simulation of anisotropic polymeric materials using polymerization-induced phase separation under combined temperature and concentration gradients," *Polymers*, vol. 11, no. 6, p. 1076, 2019.
- [12] A. Ley, P. Altschuh, V. Thom, M. Selzer, B. Nestler, and P. Vana, "Characterization of a macro porous polymer membrane at micron-scale by confocal-laser-scanning microscopy and 3d image analysis," *Journal of membrane science*, vol. 564, pp. 543–551, 2018.
- [13] S. Song, Q. Ding, and J. Wei, "Improved algorithm for estimating pore size distribution from pore space images of porous media," *Physical Review E*, vol. 100, no. 5, p. 053314, 2019.
- [14] H. P. Stüwe, *Mechanische Anisotropie*. Wien: Springer-Verlag, 2013.
- [15] S. C. Cowin, "The relationship between the elasticity tensor and the fabric tensor," *Mechanics of materials*, vol. 4, no. 2, pp. 137–147, 1985.
- [16] M. F. Souzañchi, P. Palacio-Mancheno, Y. A. Borisov, L. Cardoso, and S. C. Cowin, "Microarchitecture and bone quality in the human

- calcaneus: local variations of fabric anisotropy,” *Journal of bone and mineral research*, vol. 27, no. 12, pp. 2562–2572, 2012.
- [17] B. Ghanbarian, A. G. Hunt, R. P. Ewing, and M. Sahimi, “Tortuosity in porous media: a critical review,” *Soil science society of America journal*, vol. 77, no. 5, pp. 1461–1477, 2013.
- [18] M. Matyka, A. Khalili, and Z. Koza, “Tortuosity-porosity relation in porous media flow,” *Physical Review E*, vol. 78, no. 2, p. 026306, 2008.
- [19] J. Joos, *Microstructural Characterisation, Modelling and Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Cathodes*. Karlsruhe: KIT Scientific Publishing, 2017, vol. 30.
- [20] H. Darcy, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon: exposition et application des principes à suivre et des formules à employer dans les questions de distribution d’eau... un appendice relatif aux fournitures d’eau de plusieurs villes au filtrage des eaux*. Paris: Victor Dalmont, éditeur, 1856, vol. 1.
- [21] R. Masoodi and K. Pillai, “A general formula for capillary suction-pressure in porous media,” *Journal of Porous Media*, vol. 15, no. 8, 2012.
- [22] S. Ravi, R. Dharmarajan, and S. Moghaddam, “Measurement of capillary radius and contact angle within porous media,” *Langmuir*, vol. 31, no. 47, pp. 12 954–12 959, 2015.
- [23] P. Altschuh, W. Kunz, M. Bremerich, A. Reiter, M. Selzer, and B. Nestler, “Wicking in porous polymeric membranes: Determination of an effective capillary radius to predict the flow behavior in lateral flow assays,” *Membranes*, vol. 12, no. 7, p. 638, 2022.
- [24] H. K. Versteeg, *An introduction to computational fluid dynamics the finite volume method, 2/E*. Vereinigtes Königreich: Pearson Education, 2007.

- [25] T. Young, “Tr, an assay on the cohesion of fluids, philos,” in *Soc. Lond.*, vol. 95, 1805, pp. 65–87.
- [26] F. M. White, *Fluid mechanics*, 7th ed., ser. McGraw-Hill series in mechanical engineering. New York, NY: McGraw-Hill, 2009.
- [27] M. V. Berry, “The molecular mechanism of surface tension,” *Physics Education*, vol. 6, no. 2, p. 79, 1971.
- [28] J. Zierep and K. Bühler, *Grundzüge der Strömungslehre: Grundlagen, Statik und Dynamik der Fluide*. Wiesbaden: Springer, 2015.
- [29] R. Lenormand, E. Touboul, and C. Zarcone, “Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media,” *Journal of fluid mechanics*, vol. 189, pp. 165–187, 1988.
- [30] R. Masoodi and K. Pillai, *Wicking in Porous Materials: Traditional and Modern Modeling Approaches*. London: Taylor & Francis, 2012.
- [31] R. Lucas, “Ueber das zeitgesetz des kapillaren aufstiegs von flüssigkeiten,” *Kolloid-Zeitschrift*, vol. 23, no. 1, pp. 15–22, 1918.
- [32] E. W. Washburn, “The dynamics of capillary flow,” *Physical review*, vol. 17, no. 3, p. 273, 1921.
- [33] N. Fries, *Capillary transport processes in porous materials-experiment and model*. Göttingen: Cuvillier Verlag, 2010.
- [34] R. Masoodi, K. M. Pillai, and P. P. Varanasi, “Darcy’s law-based models for liquid absorption in polymer wicks,” *AIChE journal*, vol. 53, no. 11, pp. 2769–2782, 2007.
- [35] P. Tittmann, *Graphentheorie: eine anwendungsorientierte Einführung*. München: Carl Hanser Verlag GmbH Co KG, 2021.
- [36] P. Soille *et al.*, *Morphological image analysis: principles and applications*. Springer, 1999, vol. 2, no. 3.

- [37] K. Parvati, P. Rao, M. Mariya Das *et al.*, “Image segmentation using gray-scale morphology and marker-controlled watershed transformation,” *Discrete Dynamics in Nature and Society*, vol. 2008, 2008.
- [38] J. Canny, “A computational approach to edge detection,” *IEEE Transactions on pattern analysis and machine intelligence*, no. 6, pp. 679–698, 1986.
- [39] M. Sugita and Y. Tenjin, “The application of confocal laser scanning microscopy (clsm) in cell biology,” *Nihon rinsho. Japanese Journal of Clinical Medicine*, vol. 51, no. 4, pp. 1108–1113, 1993.
- [40] S. Shah, J. Crawshaw, and E. Boek, “Three-dimensional imaging of porous media using confocal laser scanning microscopy,” *Journal of Microscopy*, vol. 265, no. 2, pp. 261–271, 2017.
- [41] N. Otsu, “A threshold selection method from gray-level histograms,” *IEEE transactions on systems, man, and cybernetics*, vol. 9, no. 1, pp. 62–66, 1979.
- [42] L.-K. Huang and M.-J. J. Wang, “Image thresholding by minimizing the measures of fuzziness,” *Pattern recognition*, vol. 28, no. 1, pp. 41–51, 1995.
- [43] C. A. Schneider, W. S. Rasband, and K. W. Eliceiri, “Nih image to imagej: 25 years of image analysis,” *Nature methods*, vol. 9, no. 7, pp. 671–675, 2012.
- [44] J. Hötzer, A. Reiter, H. Hierl, P. Steinmetz, M. Selzer, and B. Nestler, “The parallel multi-physics phase-field framework pace3d,” *Journal of computational science*, vol. 26, pp. 1–12, 2018.
- [45] P. Altschuh, Y. C. Yabansu, J. Hötzer, M. Selzer, B. Nestler, and S. R. Kalidindi, “Data science approaches for microstructure quantification and feature identification in porous membranes,” *Journal of Membrane Science*, vol. 540, pp. 88–97, 2017.

- [46] J. T. Gostick, “Versatile and efficient pore network extraction method using marker-based watershed segmentation,” *Physical Review E*, vol. 96, no. 2, p. 023307, 2017.
- [47] T. Saito and J.-I. Toriwaki, “New algorithms for euclidean distance transformation of an n-dimensional digitized picture with applications,” *Pattern recognition*, vol. 27, no. 11, pp. 1551–1565, 1994.
- [48] M. McCormick, X. Liu, J. Jomier, C. Marion, and L. Ibanez, “Itk: enabling reproducible research and open science,” *Frontiers in neuroinformatics*, vol. 8, p. 13, 2014.
- [49] K. Palágyi and A. Kuba, “A 3d 6-subiteration thinning algorithm for extracting medial lines,” *Pattern Recognition Letters*, vol. 19, no. 7, pp. 613–627, 1998.
- [50] F. Kuypers, *Klassische Mechanik*. Hoboken, NJ: John Wiley & Sons, 2016.
- [51] B. B. Chaudhuri and G. Samanta, “Elliptic fit of objects in two and three dimensions by moment of inertia optimization,” *Pattern Recognition Letters*, vol. 12, no. 1, pp. 1–7, 1991.
- [52] J. R. Van Aken, “A rotated ellipse from three points.” [Online]. Available: https://www.researchgate.net/profile/Jerry_Van_Aken, 05.04.2024
- [53] M. Ender, *Mikrostrukturelle Charakterisierung, Modellentwicklung und Simulation poröser Elektroden für Lithiumionenzellen*. Karlsruhe: KIT Scientific Publishing, 2014, vol. 26.
- [54] J. Joos, T. Carraro, A. Weber, and E. Ivers-Tiffée, “Reconstruction of porous electrodes by fib/sem for detailed microstructure modeling,” *Journal of Power Sources*, vol. 196, no. 17, pp. 7302–7307, 2011.
- [55] J. Gostick, M. Aghighi, J. Hinebaugh, T. Tranter, M. A. Hoeh, H. Day, B. Spellacy, M. H. Sharqawy, A. Bazylak, A. Burns *et al.*, “Openpnm: a

- pore network modeling package,” *Computing in Science & Engineering*, vol. 18, no. 4, pp. 60–74, 2016.
- [56] J. H. Ferziger, M. Perić, and R. L. Street, *Numerische Strömungsmechanik*. Berlin: Springer, 2008, vol. 1.
- [57] W. Kunz, P. Altschuh, M. Bremerich, M. Selzer, and B. Nestler, “Establishing structure–property linkages for wicking time predictions in porous polymeric membranes using a data-driven approach,” *Materials Today Communications*, vol. 35, p. 106004, 2023.
- [58] X. Lopez, P. H. Valvatne, and M. J. Blunt, “Predictive network modeling of single-phase non-newtonian flow in porous media,” *Journal of colloid and interface science*, vol. 264, no. 1, pp. 256–265, 2003.
- [59] D. Li, M. W. Frey, and Y. L. Joo, “Characterization of nanofibrous membranes with capillary flow porometry,” *Journal of Membrane Science*, vol. 286, no. 1-2, pp. 104–114, 2006.
- [60] M. A. De Bruyne, R. J. De Bruyne, and R. J. De Moor, “Capillary flow porometry to assess the seal provided by root-end filling materials in a standardized and reproducible way,” *Journal of Endodontics*, vol. 32, no. 3, pp. 206–209, 2006.
- [61] Q. Xiong, T. G. Baychev, and A. P. Jivkov, “Review of pore network modelling of porous media: Experimental characterisations, network constructions and applications to reactive transport,” *Journal of contaminant hydrology*, vol. 192, pp. 101–117, 2016.
- [62] D. Zivar and P. Pourafshary, “A new approach for predicting oil recovery factor during immiscible co₂ flooding in sandstones using dimensionless numbers,” *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, vol. 9, pp. 2325–2332, 2019.
- [63] I. Fatt, “The network model of porous media,” *Transactions of the AIME*, vol. 207, no. 01, pp. 144–181, 1956.

- [64] M. J. Blunt, M. D. Jackson, M. Piri, and P. H. Valvatne, “Detailed physics, predictive capabilities and macroscopic consequences for pore-network models of multiphase flow,” *Advances in Water Resources*, vol. 25, no. 8-12, pp. 1069–1089, 2002.
- [65] N. Misaghian, M. A. Sadeghi, K. M. Lee, E. P. Roberts, and J. T. Gostick, “Utilizing pore network modeling for performance analysis of multi-layer electrodes in vanadium redox flow batteries,” *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 170, no. 7, p. 070520, 2023.
- [66] R. Moghadasi, S. Foroughi, F. Basirat, S. R. McDougall, A. Tatomir, B. Bijeljic, M. J. Blunt, and A. Niemi, “Pore-scale determination of residual gas remobilization and critical saturation in geological co₂ storage: A pore-network modeling approach,” *Water resources research*, vol. 59, no. 6, p. e2022WR033686, 2023.
- [67] A. Rabbani, S. Jamshidi, and S. Salehi, “An automated simple algorithm for realistic pore network extraction from micro-tomography images,” *Journal of Petroleum Science and Engineering*, vol. 123, pp. 164–171, 2014.
- [68] D. B. Silin, G. Jin, and T. W. Patzek, “Robust determination of the pore space morphology in sedimentary rocks,” in *SPE Annual Technical Conference and Exhibition? SPE*, 2003, pp. SPE–84 296.
- [69] A. S. Al-Kharusi and M. J. Blunt, “Network extraction from sandstone and carbonate pore space images,” *Journal of petroleum science and engineering*, vol. 56, no. 4, pp. 219–231, 2007.
- [70] H. Dong and M. J. Blunt, “Pore-network extraction from micro-computerized-tomography images,” *Physical review E*, vol. 80, no. 3, p. 036307, 2009.
- [71] V. Joekar Niasar, S. Hassanizadeh, L. Pyrak-Nolte, and C. Berentsen, “Simulating drainage and imbibition experiments in a high-porosity

- micromodel using an unstructured pore network model,” *Water resources research*, vol. 45, no. 2, 2009.
- [72] Z. Liang, M. Ioannidis, and I. Chatzis, “Geometric and topological analysis of three-dimensional porous media: pore space partitioning based on morphological skeletonization,” *Journal of colloid and interface science*, vol. 221, no. 1, pp. 13–24, 2000.
- [73] —, “Permeability and electrical conductivity of porous media from 3d stochastic replicas of the microstructure,” *Chemical engineering science*, vol. 55, no. 22, pp. 5247–5262, 2000.
- [74] A. Sheppard, R. Sok, and H. Averdunk, “Improved pore network extraction methods,” in *International Symposium of the Society of Core Analysts*, vol. 2125, 2005, pp. 1–11.
- [75] T. Sochi, “Pore-scale modeling of non-newtonian flow in porous media,” *arXiv preprint arXiv:1011.0760*, 2010.
- [76] J. Kozeny, “Ueber kapillare leitung des wassers im boden,” *Sitzungsberichte der Akademie der Wissenschaften in Wien*, vol. 136, p. 271, 1927.
- [77] P. C. Carman, “Permeability of saturated sands, soils and clays,” *The Journal of Agricultural Science*, vol. 29, no. 2, pp. 262–273, 1939.
- [78] T. Zakirov and M. Khranchenkov, “Prediction of permeability and tortuosity in heterogeneous porous media using a disorder parameter,” *Chemical Engineering Science*, vol. 227, p. 115893, 2020.
- [79] F. Jamshidi, W. Kunz, P. Altschuh, M. Bremerich, R. Przybylla, M. Selzer, and B. Nestler, “Geometric flow control in lateral flow assays: Macroscopic single-phase modeling,” *Physics of Fluids*, vol. 34, no. 6, 2022.
- [80] P.-G. Gennes, F. Brochard-Wyart, D. Quéré *et al.*, *Capillarity and wetting phenomena: drops, bubbles, pearls, waves*. New York: Springer, 2004.

- [81] C. Byon and S. J. Kim, “The effect of meniscus on the permeability of micro-post arrays,” *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 21, no. 11, p. 115011, 2011.
- [82] J. Cai, E. Perfect, C.-L. Cheng, and X. Hu, “Generalized modeling of spontaneous imbibition based on hagen–poiseuille flow in tortuous capillaries with variably shaped apertures,” *Langmuir*, vol. 30, no. 18, pp. 5142–5151, 2014.
- [83] B. Nestler, F. Wendler, M. Selzer, B. Stinner, and H. Garcke, “Phase-field model for multiphase systems with preserved volume fractions,” *Physical Review E*, vol. 78, no. 1, p. 011604, 2008.
- [84] M. B. Said, “Phasenfeldmodellierung und Simulation des Benetzungsverhaltens von Flüssigkeiten auf festen Oberflächen,” Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe, 2018.
- [85] S. M. Allen and J. W. Cahn, “A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening,” *Acta metallurgica*, vol. 27, no. 6, pp. 1085–1095, 1979.
- [86] X. Xu and X. Wang, “Derivation of the wenzel and cassie equations from a phase field model for two phase flow on rough surface,” *SIAM journal on applied mathematics*, vol. 70, no. 8, pp. 2929–2941, 2010.
- [87] S. Zhdanov, V. Starov, V. Sobolev, and M. Velarde, “Spreading of aqueous sds solutions over nitrocellulose membranes,” *Journal of colloid and interface science*, vol. 264, no. 2, pp. 481–489, 2003.
- [88] V. Starov, S. Zhdanov, and M. Velarde, “Capillary imbibition of surfactant solutions in porous media and thin capillaries: partial wetting case,” *Journal of colloid and interface science*, vol. 273, no. 2, pp. 589–595, 2004.
- [89] S. R. du Roscoat, M. Decain, X. Thibault, C. Geindreau, and J.-F. Bloch, “Estimation of microstructural properties from synchrotron x-ray

- microtomography and determination of the rev in paper materials,” *Acta Materialia*, vol. 55, no. 8, pp. 2841–2850, 2007.
- [90] T. Williams, C. Kelley, and D. Crawford, *Gnuplot 5.2 Manual: An Interactive Plotting Program*. Kroger, Ga: 12th Media Services, 2017.
- [91] A. Marmur and M. D. Leelah, “The spreading of aqueous surfactant solutions on glass,” *Chemical Engineering Communications*, vol. 13, no. 1-3, pp. 133–143, 1981.
- [92] P.-G. De Gennes, “Wetting: statics and dynamics,” *Reviews of modern physics*, vol. 57, no. 3, p. 827, 1985.
- [93] G. F. Teletzke, H. Ted Davis, and L. Scriven, “How liquids spread on solids,” *Chemical Engineering Communications*, vol. 55, no. 1-6, pp. 41–82, 1987.
- [94] A. Clarke, T. Blake, K. Carruthers, and A. Woodward, “Spreading and imbibition of liquid droplets on porous surfaces,” *Langmuir*, vol. 18, no. 8, pp. 2980–2984, 2002.
- [95] V. M. Starov, “Surfactant solutions and porous substrates: spreading and imbibition,” *Advances in colloid and interface science*, vol. 111, no. 1-2, pp. 3–27, 2004.
- [96] K. Lee, N. Ivanova, V. Starov, N. Hilal, and V. Dutschk, “Kinetics of wetting and spreading by aqueous surfactant solutions,” *Advances in colloid and interface science*, vol. 144, no. 1-2, pp. 54–65, 2008.
- [97] R. C. Daniel and J. C. Berg, “Spreading on and penetration into thin, permeable print media: Application to ink-jet printing,” *Advances in colloid and interface science*, vol. 123, pp. 439–469, 2006.
- [98] P. Alam, M. Toivakka, K. Backfolk, and P. Sirviö, “Impact spreading and absorption of newtonian droplets on topographically irregular porous materials,” *Chemical engineering science*, vol. 62, no. 12, pp. 3142–3158, 2007.

- [99] H. Tan, "Absorption of picoliter droplets by thin porous substrates," *AIChE Journal*, vol. 63, no. 5, pp. 1690–1703, 2017.
- [100] E. Ezzatneshan and R. Goharimehr, "Study of spontaneous mobility and imbibition of a liquid droplet in contact with fibrous porous media considering wettability effects," *Physics of Fluids*, vol. 32, no. 11, 2020.
- [101] Y.-M. Lin, C. Song, and G. C. Rutledge, "Direct three-dimensional visualization of membrane fouling by confocal laser scanning microscopy," *ACS applied materials & interfaces*, vol. 11, no. 18, pp. 17 001–17 008, 2019.
- [102] E. Meijering, "Featurej - image feature extraction and imagej plugin." [Online]. Available: <https://imagejscience.org/meijering/software/featurej/>, 17.04.2024
- [103] J. Ollion, J. Cochenec, F. Loll, C. Escudé, and T. Boudier, "Tango: a generic tool for high-throughput 3d image analysis for studying nuclear organization," *Bioinformatics*, vol. 29, no. 14, pp. 1840–1841, 2013.
- [104] A. E. Urusov, A. V. Zherdev, and B. B. Dzantiev, "Towards lateral flow quantitative assays: detection approaches," *Biosensors*, vol. 9, no. 3, p. 89, 2019.
- [105] F. Wang, P. Altschuh, L. Ratke, H. Zhang, M. Selzer, and B. Nestler, "Progress report on phase separation in polymer solutions," *Advanced Materials*, vol. 31, no. 26, p. 1806733, 2019.
- [106] Y. Zhao, P. Altschuh, J. Santoki, L. Griem, G. Tosato, M. Selzer, A. Koeppel, and B. Nestler, "Characterization of porous membranes using artificial neural networks," *Acta Materialia*, vol. 253, p. 118922, 2023.
- [107] M. Kader, P. Hazell, A. Brown, M. Tahtali, S. Ahmed, J. Escobedo, and M. Saadatfar, "Novel design of closed-cell foam structures for property enhancement," *Additive Manufacturing*, vol. 31, p. 100976, 2020.

- [108] E. Elizalde, R. Urteaga, and C. L. Berli, “Rational design of capillary-driven flows for paper-based microfluidics,” *Lab on a Chip*, vol. 15, no. 10, pp. 2173–2180, 2015.
- [109] M. D. Wilkinson, M. Dumontier, I. J. Aalbersberg, G. Appleton, M. Axton, A. Baak, N. Blomberg, J.-W. Boiten, L. B. da Silva Santos, P. E. Bourne *et al.*, “The fair guiding principles for scientific data management and stewardship,” *Scientific data*, vol. 3, no. 1, pp. 1–9, 2016.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Schematische Darstellung des in a) gezeigten Lateral-Flow-Tests inklusive der zugehörigen Längenskalen. Die Mikroskala erfasst die Membranstruktur, die in b) mikroskopisch dargestellt und in c) als dreidimensionales digitales Modell präsentiert wird. Die Anwendungsskala umfasst den Bereich der Flüssigkeitsausbreitung sowie den in Abbildung d) hervorgehobenen Testbereich.	2
2.1	Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Lateral-Flow-Tests. Die einzelnen Komponenten und die ablaufenden chemischen Reaktionen werden dabei hervorgehoben.	8
2.2	In a) ist eine Vereinfachte Darstellung einer Ziehmaschine zur Anwendung des Verdunstungsverfahrens dargestellt. Das sich in Produktionsrichtung bewegende Metallband, auf dem der Übergang von Polymerlösung zur porösen CN-Membran erfolgt, ist dabei mit drei verschiedenen Trockenkammern dargestellt. In b) wird die Definition der lateralen Richtungen entlang der Produktionsrichtung (PR) und quer dazu (QR) anhand einer nach dem Herstellungsprozess aufgerollten Membran verdeutlicht.	10
2.3	Abbildung a) zeigt eine isotrope poröse Struktur, b) eine transversal isotrope poröse Struktur, wobei eine Streckung des Porenraums in z-Richtung vorliegt. In c) wird eine orthotrope poröse Struktur abgebildet, bei der der Porenraum in alle Raumrichtungen unterschiedlich gestreckt ist.	14

2.4	Schematische 2D-Darstellung der geometrischen Tortuosität, wobei für alle drei Strukturen der Porenraum in hellgrau und die Struktur in dunkelgrau dargestellt ist. Abbildung a) zeigt eine poröse Struktur mit einer Tortuosität von $\tau_g = 1$. In b) ist ein gekippter Porenraum abgebildet, wobei $\tau_g > 1$ gilt. Für eine komplexe Struktur wie in c) dargestellt, kann das Konzept der geometrischen Tortuosität nicht mehr angewendet werden.	16
2.5	Skizze a) zeigt qualitativ das Lennard-Jones-Potential mit Kennzeichnung der anziehenden Kraft F_{an} , der abstoßenden Kraft F_{ab} und dem Gleichgewichtsabstand r_{GG} . In Skizze b) sind links im Bild die im Inneren der Phasen vorliegenden zwischenmolekularen Kräfte der Flüssigkeitsmoleküle dargestellt, während rechts die Kräfte an der Grenzfläche abgebildet sind.	19
2.6	In a) wird die hydrophile Benetzung einer idealen Festkörperoberfläche (S) durch einen Flüssigkeitstropfen (F) in Anwesenheit von dem umgebendem Fluid (G) dargestellt. Darüber hinaus wird der trigonometrische Zusammenhang zwischen den Oberflächenenergien und dem Kontaktwinkel an der Kontaktlinie verdeutlicht. In b) wird eine vollständige Benetzung und in c) eine hydrophobe Benetzung veranschaulicht.	21
2.7	Schematische Darstellung des an der Grenzfläche vorliegenden Druckunterschieds Δp anhand einer in a) gezeigten halbkugelförmigen Grenzfläche mit dem Radius R und eines in b) dargestellten beliebig gekrümmten rechteckförmigen Flächenelements mit den beiden Krümmungsradien R_1 und R_2	23
2.8	Die Abbildungen a) und b) zeigen die relevanten Kräfte und Impulse auf ein Kontrollvolumen zur Modellierung des Flüssigkeitsanstiegs in einer zylindrischen Kapillare. In a) werden die Kapillar- und Gravitationskräfte dargestellt, während in b) die Effekte von Reibung und Trägheit veranschaulicht werden.	24

2.9	Die zweidimensionale poröse Struktur, die in Teilabbildung a) zu sehen ist, wird in Teilabbildung b) durch ein Porennetzwerkmodell repräsentiert. Dabei wird der Porenraum lediglich durch Poren und Kanäle abstrahiert.	29
2.10	Darstellung des in a) gezeigten Bildes als dreidimensionales Höhenprofil in b).	30
2.11	Schematische Darstellung der Wasserscheidentransformation eines 2D-Bildes: In a) erfolgt noch keine Berührung zweier Sammelbecken, in b) wird die erste Wasserscheide detektiert und in c) ist das Bild vollständig in drei Bildsegmente unterteilt. In d) wird die markerbasierte Wasserscheidentransformation veranschaulicht, wobei die Erhöhung des Grundwasserspiegels von den beiden rot markierten Markern ausgeht. Schließlich zeigt Abbildung e) das vollständig segmentierte Bild.	31
2.12	In a) wird schematisch der letzte Schritt des <i>Canny-Algorithmus</i> zur Auswahl von starken und schwachen Kanten dargestellt. Dabei wird anhand der Gradientenwerte der zuvor erkannten Kanten A, B und C verdeutlicht, welche Kanten beibehalten und welche verworfen werden. In c) wird die Anwendung des <i>Canny-Algorithmus</i> auf das in b) gezeigte Bild veranschaulicht.	33
2.13	Anwendung des <i>Closing-Algorithmus</i> auf das in a) gezeigte binäre Bild mit drei rechteckigen Objekten. Zunächst werden die Objekte durch eine Dilatation mit einem quadratischen Strukturelement um die in b) hellgrau hervorgehobenen Pixel erweitert. Nach einer anschließenden Erosion mit demselben Strukturelement, ergibt sich das fertige Bild in c).	34

3.1	Abbildung a) zeigt schematisch die Funktionsweise eines Konfokalen Laser-Scanning Mikroskops. Das von der Lichtquelle ausgehende Licht ist grün und das von der Probe reflektierte Licht wird rot dargestellt. In b) wird ein Bilderstapel einer porösen Membran mit einer Auflösung von 160 nm/Pixel und einer Größe von $1024 \times 1024 \times 4$ Pixel abgebildet.	37
3.2	Schritte zur Erstellung eines digitalen Zwillings basierend auf CLSM-Daten einer realen Membran: Abbildung a) zeigt die Rohaufnahmen der CLSM-Daten, b) die intensitätsgefilterten Daten, c) den Bilderstapel nach der Glättung mit einem Gaußfilter, d) den segmentierten Bilderstapel und Abbildung e) den finalen digitalen Zwilling der grau dargestellten Membranstruktur.	38
3.3	In a) wird das Histogramm der Graustufenwerte des Bilderstapels aus Abbildung 3.2c) dargestellt. Abbildung b) veranschaulicht schematisch die Segmentierung des Histogramms in Poren- und Strukturraum basierend auf einem Schwellenwert.	39
3.4	Vier Strukturen generiert durch den Voronoi-Algorithmus aus Abschnitt 3.2.1. In Abbildung a) ist eine Struktur mit 40 % Porosität dargestellt, b) zeigt dieselbe Struktur mit einer Porosität von 80 %. In c) wird eine gestreckte Struktur in x-Richtung gezeigt und in d) eine Struktur mit variierendem Stegdurchmesser abgebildet.	43

-
- 3.5 Schematische Darstellung der einzelnen Schritte des *SNOW-Algorithmus* [46] in 2D. In a) ist die initiale 2D-Struktur zu sehen, die segmentiert werden soll. Die dunkelgraue Farbe repräsentiert die Struktur, während der Porenraum in hellgrau dargestellt ist. Abbildung b) zeigt die Überlagerung des geglätteten Euklidischen Distanzfelds und der Struktur. In c) sind die initial detektierten lokalen Maxima rot markiert, wobei auch ein Sattel und ein Plateau erkennbar sind. d) zeigt die lokalen Maxima, nachdem Sättel und Plateaus eliminiert wurden. In e) wurden nahegelegene Maxima zusammengefasst. Schließlich wird in f) die resultierende Segmentierung basierend auf der markerbasierten Wasserscheidentransformation präsentiert. Jeder Pixel wird dabei einem Segment über eine entsprechende Markierung eindeutig zugeordnet. 45
- 3.6 Abbildung a) zeigt einen Teilausschnitt einer porösen 3D-Struktur. Der Porenraum ist blau und die Struktur grau dargestellt. In b) ist die entsprechende Segmentierung des Porenraums abgebildet, die auf der markerbasierten Wasserscheidentransformation basiert. 47

- 3.7 Validierung des *SNOW-Algorithmus*: In a) wird die Gegenüberstellung der Voronoipunktzahl und der extrahierten Anzahl an Markern von fünf $200 \times 200 \times 200$ Voxel großen Strukturen gezeigt. Wie zu sehen ist, stimmen beide Werte exakt überein. In b) ist links die Struktur mit einer Voronoipunktzahl von 10 Punkten dargestellt. Zusätzlich wird rechts exemplarisch ein 2D-Schnitt des dazugehörigen Voronoigebietes an der Position $z = 84$ gezeigt, die unterschiedlichen Farben entsprechen dabei den jeweiligen Voronoiregionen. In c) ist ebenfalls ein 2D-Schnitt an der Position $z = 84$ dargestellt, diesmal jedoch von der Segmentierung des Porenraums der Struktur aus Abbildung b), wobei jede Farbe ein zusammenhängendes Segment abbildet. Hierbei ist eine deutliche Übereinstimmung mit der dazugehörigen Voronoizerlegung aus b) ersichtlich. 48
- 3.8 Zweidimensionale Veranschaulichung der Prozessschritte zur Zeichnung der Struktur: Abbildung a) zeigt die initiale Segmentierung, die auf einer markerbasierten Wasserscheidentransformation beruht, die durch den *SNOW-Algorithmus* ermöglicht wird. In b) ist die initial gezeichnete Struktur grau dargestellt. In c) wird der entsprechende Graph gezeigt, wobei Kreise die Knoten repräsentieren und schwarze Linien die Kanten darstellen. Grüne Knoten können dabei entfernt werden, ohne die Konnektivität der Struktur zu beeinträchtigen. Abbildung d) zeigt die neu gezeichnete Struktur, bei der Knoten bzw. Stege entfernt wurden, um die Porosität bei gleichbleibendem Stegradus zu erhöhen. Der gesamte iterative Prozess wird schematisch in e) dargestellt. 50
- 4.1 In a) ist eine binäre voxelbasierte Struktur im kartesischen Koordinatensystem abgebildet. Die Struktur ist grau gekennzeichnet. Abbildung b) verdeutlicht anhand eines kleineren Ausschnitts den voxelbasierten Charakter. 52

4.2	Zur Veranschaulichung eines Euklidischen Distanzfeldes wird in a) ein vereinfachter geschlossener 2D Porenraum dargestellt. In b) ist das zugehörige Euklidische Distanzfeld des Porenraums sowie die mittels des Skelettierungsalgorithmus erzeugte Medial-Achse dargestellt.	53
4.3	Die obere Abbildung zeigt links eine poröse Struktur und die Verteilung der Porenradien entlang der Medialen Achse, rechts dazu wird die dazugehörige Verteilung der ermittelten Porenradien als Histogramm dargestellt. Im unteren Bild wird das Selbe für den Strukturraum und die darin ermittelten Stegradien abgebildet.	54
4.4	Visualisierung der Methode zur Bestimmung der strukturellen Anisotropie. Dabei werden für die poröse Struktur aus Abbildung a) beispielhaft drei segmentierte Poren in b) gezeigt. In c) sind die an die einzelnen Porensegmente angepassten Ellipsoide dargestellt, und in d) wird das aus allen ermittelten Ellipsoiden berechnete gemittelte Ellipsoid zusammen mit dem zugehörigen Begrenzungsrahmen präsentiert.	55
4.5	In a) wird eine Gitterstruktur zur Validierung der Messung der strukturellen Anisotropie dargestellt. Bei der in b) gezeigten Gegenüberstellung des gemessenen und bekannten Grad der Anisotropie wurde die Kantenlänge b der Gitterstruktur variiert, während die übrigen Kantenlängen konstant gehalten wurden.	57
4.6	Für den in Abbildung 4.1b) dargestellten Ausschnitt einer porösen Membranstruktur wird die intrinsische Oberfläche S in orange hervorgehoben.	58
4.7	In a) ist das Simulationssetup zur Berechnung der Tortuosität in x -Richtung abgebildet, wobei die Randbedingungen (RB) verdeutlicht werden. Die für Gleichung 4.19 relevante Querschnittsfläche A entspricht dabei der roten Fläche. In b) werden einzelne Transportwege zur Visualisierung der Tortuosität in die x -Richtung abgebildet.	60

4.8	Zur Berechnung der Permeabilität in einem PNM, wird dieses in einzelne Zellen unterteilt. Die Abbildung zeigt eine solche Zelle, bestehend aus den zwei Teilporen i und j sowie dem verbindenden Kanal K . Dabei werden die Teilporen als Kegelstümpfe und der Kanal als Zylinder angenommen.	63
4.9	Im linken Bild wird der Benetzungsprozess einer porösen Membran während eines Wickingexperiment schematisch dargestellt. Die Aufnahme in der Mitte zeigt eine Momentaufnahme zur Erfassung der Wickinghöhe h zum Zeitpunkt t , woraus sich der rechts dargestellte Wickingverlauf ergibt.	65
4.10	Qualitative Darstellung der detektierten Messkurven während einer Kapillarflussporometrie.	67
5.1	Abbildung a) zeigt einen Teilausschnitt einer porösen 3D-Struktur. Der Porenraum ist in blau und die Struktur in grau dargestellt. In b) ist die entsprechende Segmentierung des Porenraums dargestellt, die auf der markerbasierten Wasserscheidentransformation beruht. In c) sind die Kontaktflächen beziehungsweise Wasserscheiden zwischen den einzelnen Segmenten rot hervorgehoben.	72
5.2	In a) ist eine generierte poröse Struktur aus Kugeln und Zylindern abgebildet. Dabei zeigt das blaue Volumen den Porenraum und das graue Volumen die Struktur. In b) wird das daraus abgeleitete Porennetzwerkmodell dargestellt, wobei die roten Kugeln die Poren und die blauen Zylinder die Kanäle repräsentieren. In c) und d) werden die Verteilungen der generierten und extrahierten Porenradien sowie Kanalradien der Struktur aus a) gegenübergestellt, wobei die Verteilungen exakt übereinstimmen.	79

- 5.3 In a) wird die vereinfachte Struktur bestehend aus Kugeln und Zylindern, zur Validierung der Extraktion dargestellt. Dabei sind drei Zylinder parallel zur x -Achse ausgerichtet und drei Zylinder in der xz -Ebene um 45° gekippt. In b) wird die relative Abweichung der extrahierten Parameter des Porenradius, des Kanalradius und der direkten Kanallänge über dem vorgegebenen Kanalradius aufgetragen. Dabei wird, ausgehend von einem Kanalradius von 2,5 Zellen die Diskretisierung verdoppelt, verdreifacht und vervierfacht. 80
- 5.4 In a) wird ein Ausschnitt einer generierten Struktur gezeigt, wobei zusätzlich ein detektiertes Porensegment abgebildet wird. In b) wird die Berechnung von $r_{p, PNM}$ verdeutlicht, welcher die größtmögliche Kugel repräsentiert, die in das Segment passt, ohne die Struktur zu berühren. In c) wird die Berechnung von $b_{x,y,z}$ veranschaulicht, wobei die Ellipsoide, die das Porensegment beschreibt, in orange dargestellt ist. In d) wird sowohl die Medial-Achse als auch das Distanzfeld entlang der Medial-Achse abgebildet. 82
- 5.5 In a) sind drei Strukturen mit einer Gebietsgröße von $104\mu\text{m} \times 104\mu\text{m} \times 104\mu\text{m}$ dargestellt: eine isotrope Struktur und zwei anisotrope Strukturen, die mit einer strukturellen Ausrichtung entlang der x -Richtung generiert wurden. In b) werden die Ergebnisse der unterschiedlichen Methoden zur Berechnung eines geometrischen Porenradius gezeigt. Für jeden Grad der Anisotropie wird der Mittelwert sowie die Standardabweichung des jeweiligen Radius über die fünf Strukturen gezeigt. Die Übereinstimmung des in grün dargestellten Verlaufs von $\bar{b}_z/2$ mit dem von $\bar{b}_y/2$ führt dazu, dass ersterer verdeckt wird. 84

- 5.6 Abbildung a) zeigt die Ergebnisse verschiedener computergestützter Methoden zur Bestimmung des geometrischen Porenradius in synthetisch erzeugten orthotropen Strukturen. Für jeden Anisotropiegrad DA_1 werden sowohl der Durchschnittswert als auch die Standardabweichung des Radius für die fünf Strukturen dargestellt. Eine analoge Darstellung findet sich in b) für den zweiten Anisotropiegrad DA_2 . In Abbildung c) sind drei Strukturen mit unterschiedlichen Anisotropiegraden exemplarisch dargestellt. Zur besseren Veranschaulichung wird jeweils nur ein Ausschnitt von $48\mu\text{m} \times 48\mu\text{m} \times 48\mu\text{m}$ der gesamten Struktur gezeigt. 86
- 5.7 In a) werden die Ergebnisse der Simulationsstudie zum Einfluss der Porenanzahl bei einer konstanten Porosität von 85 % und in b) die Ergebnisse der Simulationsstudie zur Analyse des Einflusses der Porosität bei einer konstanten Porenanzahl von 3000 Poren auf die Aussagekraft der einphasigen Strömungssimulation in Porennetzwerkmodellen präsentiert. Für jeden Ergebnispunkt wird der Mittelwert und die Standardabweichung basierend auf drei Strukturen gezeigt. . . . 91
- 5.8 Laufzeitvergleich der Berechnung der Permeabilitäten entlang der drei Raumrichtungen mittels der voxelbasierten Methode und der Methode, die auf der Extraktion eines Porennetzwerkmodells basiert. Gemessen wurde die benötigte Prozessorzeit, beginnend mit dem digitalen Zwilling einer porösen Membranstruktur bis hin zur Ermittlung der Permeabilitätswerte. 94

- 5.9 In a) wird das Verhalten der richtungsabhängigen Permeabilitätswerte $K_{xx,PNM}$, $K_{yy,PNM}$ und $K_{zz,PNM}$ in Bezug auf den Grad der Anisotropie DA für die in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen transversal isotropen Strukturen dargestellt. Abbildung b) zeigt die dazu korrespondierenden, computergestützt ermittelten Tortuositätswerte. Für jeden Ergebnispunkt wird der Mittelwert und die Standardabweichung basierend auf fünf Strukturen gezeigt. 96
- 5.10 Abbildung a) illustriert das Verhalten der richtungsabhängigen Permeabilitätswerte $K_{xx,PNM}$, $K_{yy,PNM}$ und $K_{zz,PNM}$ in Bezug auf den Anisotropiegrad DA_1 . Dies geschieht für die in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen orthotropen Membranstrukturen. In b) werden die entsprechenden Tortuositätswerte dargestellt. Abbildung c) zeigt anhand eines Porensegmentes einer Membranstruktur mit einem Anisotropiegrad von $DA_1 = 0,354$ und $DA_2 = 0,0$, wie eine Ausrichtung der Struktur in y -Richtung die Tortuositätstransportwege beeinflusst. Für jeden Ergebnispunkt wird der Mittelwert und die Standardabweichung basierend auf fünf Strukturen gezeigt. 98
- 5.11 Untersuchung zum Einfluss der Bildauflösung auf die Berechnung von K_{PNM} , wobei in a) die Ergebnisse der realen Membranproben A und B und in b) der Proben C und D gezeigt sind. 100

5.12	In b1) sind die frei im Porenraum schwebenden Strukturartefakte eines vergrößerten Ausschnitts der in a) abgebildeten porösen Membranstruktur farbig markiert. In b2) wird derselbe Ausschnitt gezeigt, jedoch wurden hier die Strukturartefakte herausgefiltert und entfernt. Die Abbildungen c1) und c2) präsentieren die entsprechende Segmentierung des Porenraums. Dabei wird im rot markierten Bereich deutlich, dass in c2) durch das Entfernen der Strukturartefakte weniger Segmente detektiert wurden als in c1). In d1) und d2) wird das jeweilige extrahierte PNM für den Ausschnitt aus a) visualisiert.	102
6.1	Darstellung der Arbeitsabfolge zur Erstellung der Struktur-Wicking-Beziehung in Membranen. Links werden in a) auf der Mikroskala synthetische Strukturen mit unterschiedlichen Eigenschaften generiert, anschließend wird in b) für jede Struktur der mittlere Stegradius, in c) die Porosität, in d) die Tortuosität, in e) die Permeabilität und in f) der effektive Porenradius ermittelt. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse werden verwendet, um auf der makroskopischen Skala mittels des in g) abgebildeten Wickingmodels das in h) dargestellte Wickingverhalten in medizinischen Schnelltests vorhersagen zu können.	108
6.2	Schematische Darstellung der Phasenfeldmethode mit einem teilweise benetzten Festkörper auf der rechten Seite des Bildes und der Darstellung des diffusen Grenzflächenübergangs des Phasenfeldparameters ϕ_l auf der linken Seite.	113
6.3	In a) wird der Ausschnitt einer Kapillare mit Kapillaranstieg gezeigt, wobei in b) die Meniskushöhe h_m der freien Oberfläche und der Kapillarradius r veranschaulicht werden.	118

-
- 6.4 In a) wird die relative Abweichung f_h zwischen den simulierten und analytisch ermittelten Steighöhen dargestellt. Zur Validierung der in Abschnitt 6.3.1 vorgestellten Methode zur Berechnung der mittleren Krümmung wird in b) die relative Abweichung dieser Methode zur analytischen Lösung dargestellt. Die Berechnung von f_h und f_H erfolgt analog zu Gleichung 6.26. 119
- 6.5 In a) wird die initiale Teilfüllung zur simulativen Benetzung der Struktur abgebildet, welche mittels einer Neumann-Randbedingung realisiert wird. Abbildung b) zeigt exemplarisch die Messung der mittleren Krümmung $H_{x,i}$ der freien Oberfläche sowie den nach Gleichung 6.28 ermittelten Mittelwert der Krümmung H_x . Weiterhin wird in b1) und b2) die freie Oberfläche der Flüssigkeit zu zwei unterschiedlichen Zeitpunkten abgebildet. 121
- 6.6 Abbildung a) zeigt die Benetzung im Gleichgewichtszustand einer Zylinderstruktur mit einem Zylinderradius von 1,25 mm unter Berücksichtigung der Gravitation. In b) wird die Gegenüberstellung der nach Jurin [80] analytisch ermittelten und der simulativ berechneten Steighöhe über dem effektiven Porenradius $r_{\text{eff}, x}$ gezeigt. Die Abweichung beträgt maximal 5,7 %. 122
- 6.7 Gegenüberstellung der Wickingexperimente und der unterschiedlichen Modellierungsansätze zur Vorhersage des Wickingverlaufs der in a) gezeigten Probe A und in b) abgebildeten Probe B mit *Porefil*® als Wickingfluid. Der Kapillardruck wurde einerseits mit dem mittleren geometrischen Porenradius r_p , dem effektiven Kapillarradius r_c und dem in dieser Arbeit vorgestellten Ansatz (siehe Abschnitt 6.3) zur Bestimmung eines richtungsgabhängigen effektiven Porenradius r_{eff} abgebildet. Dabei wurde aufgrund fehlender Experimente für Probe A und B lediglich das Wickingverhalten in Produktionsrichtung untersucht. 124

6.8 In Abbildung a) werden die Wickingexperimente für Probe C in Produktionsrichtung (PR) sowie quer zur Produktionsrichtung (QR) gezeigt. Als benetzendes Fluid wurde *Porefil*® verwendet. In b) wurden dieselben Untersuchungen für Probe D durchgeführt. 125

6.9 In Abbildung a) werden die Wickingexperimente mit *Porefil*® für Probe C in Produktionsrichtung sowie quer zur Produktionsrichtung mit den Wickingvorhersagen basierend auf Gleichung 6.7 gegenübergestellt. In b) ist dasselbe für Probe D dargestellt. 126

6.10 In Abbildung a) werden die Wickingexperimente für Probe D in Produktionsrichtung sowie quer zur Produktionsrichtung ohne eine Imprägnierung gezeigt. In b) wurden dieselben Untersuchungen durchgeführt, wobei hier die Membranprobe eine Imprägnierung mit Tensiden erfahren hat. Für alle Experimente wurde als Wickingflüssigkeit destilliertes Wasser mit den in Tabelle 6.1 gezeigten Eigenschaften verwendet. 129

6.11 In a) wird die relative Abweichung zwischen der projizierten Wickingzeit $t_{W, PR}(\bar{\gamma}_{FG}, \bar{\theta})$ und der experimentell ermittelten Wickingzeit t_{PR} in Abhängigkeit von $\bar{\gamma}_{FG}$ und $\bar{\theta}$ als Konturdiagramm dargestellt. Dabei wird das Wicking bei einer Wickinghöhe von 40 mm für die Membranprobe D in Produktionsrichtung betrachtet. Als Wickingflüssigkeit wurde destilliertes Wasser mit den in Tabelle 6.1 gezeigten Eigenschaften verwendet. Die in rot hervorgehobene Isolinie zeigt die Kombinationen aus $\bar{\gamma}_{FG}$ und $\bar{\theta}$, bei denen die Vorhersage mit dem Experiment übereinstimmt. In b) wird das Wickingverhalten für die Probe D mit den nach der Methode aus Abschnitt 6.4 ermittelten Benetzungseigenschaften sowohl in Produktionsrichtung als auch quer zur Produktionsrichtung mit den experimentellen Verläufen verglichen. 130

- 6.12 In a) wird der basierend auf den CLSM-Aufnahmen erzeugte digitale Zwilling der Membranprobe E veranschaulicht. Dabei wird der größtmögliche Ausschnitt mit einer Kantenlänge von $108,8 \mu\text{m}$ abgebildet. In b) ist eine aus Probe E abgeleitete synthetische Struktur gezeigt. Das Vorgehen zur Bestimmung eines deterministischen RVE wird in c) verdeutlicht. Die Ergebnisse der Bestimmung eines deterministischen RVE für die Parameter Porosität, mittlerer Stegradius, mittlerer geometrischer Porenradius, spezifische Oberfläche, Tortuosität, Permeabilität und effektiver Porenradius werden für Probe E in d), Probe F in e) und Probe G in f) gezeigt. 134
- 6.13 In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die Anpassungsfunktion $r_p(r_s, \varepsilon)$, welche in b) als Konturdiagramm abgebildet wird. 136
- 6.14 In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die dazugehörige Anpassungsfunktion $S_V(r_s, \varepsilon)$. Zur besseren Veranschaulichung wird $S_V(r_s, \varepsilon)$ in b) zusätzlich als Konturdiagramm abgebildet. 139
- 6.15 In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die dazugehörige Anpassungsfunktion $\tau(r_s, \varepsilon)$. Zur besseren Veranschaulichung wird $\tau(r_s, \varepsilon)$ in b) zusätzlich als Konturdiagramm abgebildet. 140

- 6.16 In a) werden die computergestützt ermittelten Messwerte der Permeabilität in den synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die dazugehörige Anpassungsfunktion $K(r_s, \epsilon)$. Zur besseren Veranschaulichung wird $K(r_s, \epsilon)$ in b) zusätzlich als Konturdiagramm abgebildet. 142
- 6.17 In a) werden die ermittelten Messwerte des effektiven Porenradius r_{eff} in den synthetisch generierten Strukturen als rote Punkte abgebildet. Die blau dargestellte Fläche repräsentiert die Anpassungsfunktion $r_{\text{eff}}(r_s, \epsilon)$, welche in b) zur besseren Veranschaulichung als Konturdiagramm abgebildet ist. 145
- 6.18 In a) wird zunächst der Größenunterschied zwischen der Mikrostruktur und dem makroskopisch sichtbaren Wickingverhalten illustriert. In b) wird das Wickingverhalten exemplarisch für drei verschiedene Membranen dargestellt. Dabei wurde für alle Membranen derselbe mittlere Stegradius von $0,68 \mu\text{m}$ gewählt, während die Porosität von 82% über 85% bis 89% variiert. Eine innerhalb des betrachteten Parameterbereichs gültige Struktur-Wickingzeit-Beziehung wird in Abbildung c) als Konturdiagramm präsentiert. Dabei zeigt das Konturdiagramm die Wickingzeit t_w bei einer Wickinglänge von 40 mm über den Strukturparametern Stegradius und Porosität. Entsprechend dazu wird in d) die zugehörige Struktur-Wickinggeschwindigkeit-Beziehung dargestellt. Als Wickingflüssigkeit wurde in allen Fällen destilliertes Wasser angenommen. 150

-
- 7.1 In a) ist der experimentelle Auftrag von Tropfen auf eine zuvor mit dem Fluoreszenzfarbstoff *Alexa Fluor®555* präparierte Membran dargestellt. In der Tropfenflüssigkeit ist der Fluoreszenzfarbstoff *Oregon Green®488* gelöst. Durch diese doppelte Anfärbung der Membran können anschließend mithilfe eines Konfokalmikroskops (CLSM) sowohl ein in b) gezeigter dreidimensionaler Bilderstapel der von dem Tropfen benetzten Membran als auch ein in c) abgebildeter zweiter Bilderstapel der dazugehörigen Membranstruktur aufgenommen werden. Somit ist es möglich, die Ausbreitung des Tropfens sowohl in der lateralen Ebene entlang der Produktionsrichtung (PR) und quer dazu (QR) als auch über die Dicke der Membran (MT) hinweg darzustellen. 154

- 7.2 Abbildungen a) bis f) zeigen die einzelnen Schritte der Bildverarbeitung zur Segmentierung des CLSM-Bilderstapels des aufgetragenen Tropfens, wobei ein exemplarisches Bild in der lateralen Ebene (in Produktionsrichtung (PR) und quer zur Produktionsrichtung (QR)) dargestellt wird. Ausgangspunkt ist das in a) gezeigte mikroskopierte Bild. Zuerst erfolgt in b) eine Anpassung des Bildkontrasts. Anschließend wird in c) ein dreidimensionaler Medianfilter angewendet, um Rauscheffekte zu minimieren. Unter Verwendung des *Canny-Algorithmus* wird die benetzte Membranoberfläche erkannt, was zu dem in d) gezeigten binären Bild führt. Danach wird in e) der Bereich zwischen den erkannten Kanten unter Beibehaltung der äußeren Tropfenform gefüllt, um in f) schließlich die zur Bildausschnitt passende, ebenfalls mikroskopierte Membranstruktur zu subtrahieren. Durch das Zusammenführen des Bilderstapels entlang der Membrantiefe (MT) wird in g) ein dreidimensionales Abbild sowohl des Tropfens als auch der dazugehörigen Membranstruktur gezeigt, wobei in h) der Tropfen (blau) sowie das an den Tropfen angepasste Ellipsoid (orange) dargestellt ist. 156
- 7.3 Auswertung der experimentellen Untersuchung der Tropfenausbreitung in den Membranproben H, I und J, wobei in a) das Tropfenvolumen V_T und in b) die Ausbreitung $\bar{b}_{T,MT}$ in die Membrantiefe (MT) gezeigt wird. . . . 158
- 7.4 Gegenüberstellung des Verhältnisses der Tropfenausbreitung $\bar{b}_{T,PR}/\bar{b}_{T,QR}$ entlang (PR) und quer zur (QR) zur Produktionsrichtung bezüglich dem Verhältnis der in a) gezeigten Tortuosität, in b) der Permeabilität und in c) des effektiven Porenradius. 160

- 7.5 Mithilfe eines Spotter-Geräts, wie es in Abbildung a) dargestellt ist, wird ein gleichmäßiger Auftrag von gelöstem Fluoreszenzfarbstoff sowohl entlang (PR) als auch quer (QR) zur Produktionsrichtung der Membran durchgeführt. Anschließend wird ein roter Ausschnitt, wie in Abbildung b) gezeigt, unter Verwendung eines Konfokalmikroskops mikroskopiert. Dies ermöglicht die Erzeugung eines entlang der Membrantiefe (MT) dreidimensionalen Bildstapels der gezogenen Linie, wie in Abbildung d) veranschaulicht. Darüber hinaus wird ein in b) blau markierter repräsentativer Ausschnitt in unmittelbarer Nähe der Linie mikroskopiert, um einen in c) gezeigten Bilderstapel der Membranstruktur zu erfassen. Dies ermöglicht es, die strukturellen Eigenschaften mit dem Linienauftrag zu verknüpfen. 162
- 7.6 Bildbearbeitungsschritte für die quantitative Auswertung der experimentellen Untersuchung der Linienauftragung, exemplarisch dargestellt an einer 2D-Aufnahme eines gesamten 3D-Bilderstapels. Ausgehend vom CLSM-Graustufenbild in a), in dem keine klar definierte Linienbreite erkennbar ist, wird zur Minimierung von Rauscheffekten zunächst wie in b) gezeigt ein Gaußfilter mit einer festgelegten Standardabweichung von $\sigma = 1,92\mu\text{m}$ angewendet. Basierend darauf wird durch den Einsatz des *Otsu-Algorithmus* das Bild wie in c) ersichtlich binarisiert, wobei die benetzte intrinsische Membranoberfläche weiß und alle anderen Bereiche schwarz dargestellt sind. Ein *Closing-Algorithmus* wird angewendet, um, wie in d) gezeigt, den Bereich zwischen der benetzten Membranoberfläche zu füllen. Anschließend werden in e) verbleibende Hohlräume mit dem *Fill Holes-Algorithmus* komplett geschlossen, was eine eindeutige Detektion der Außenkante ermöglicht. Die Messung dieser Außenkante wird in f) visualisiert. 164

- 7.7 In a) wird ein dreidimensionaler Zwilling des experimentellen Linienauftrags auf einer Membranstruktur abgebildet, wobei der obere Bereich von $10\ \mu\text{m}$, der entscheidend für das Farbsignal in einem Lateral-Flow-Test ist, hervorgehoben wird. In b) werden die Linienbreiten \bar{w} für die vier untersuchten Membranproben innerhalb dieses Bereichs sowohl in Produktionsrichtung (PR) als auch quer dazu (QR) aufgezeichnet. In c) wird das zugehörige Verhältnis der Linienbreite dargestellt. Abbildung d) zeigt die strukturelle Anisotropie DA_{lat} , die in den rekonstruierten Strukturaufnahmen für jede Membranprobe in Bezug auf die laterale Ebene gemessen wurde. 166
- 7.8 Für jede der vier Membranproben K, L, M und N werden sowohl entlang der Produktionsrichtung (PR) als auch quer dazu (QR) die gemessene Linienbreite \bar{w} bezüglich der richtungsabhängigen Strukturparameter gezeigt, wobei in a) die Tortuosität τ , in b) die Permeabilität K und in c) der effektive Porenradius r_{eff} betrachtet werden. 168
- 7.9 Die Erkenntnisse zum Linienauftrag auf porösen Membranen werden auf die strukturellen Wechselwirkungen (vgl. Kapitel 6.5) übertragen. Die rote Linie in der Abbildung repräsentiert den qualitativen Trend einer Verbreiterung der resultierenden Linie. In den Abbildungen a), b) und c) werden die Wechselwirkungen zwischen der Tortuosität τ , der Permeabilität K und dem effektiven Porenradius r_{eff} in Abhängigkeit von der Porosität ε und dem mittleren Stegradius r_s dargestellt. 170
- 8.1 Schematische Darstellung einer potenziellen zweiphasigen Analyse des Eindringvorgangs mit einem Porennetzwerkmodell während des Linienauftrags. 177

Tabellenverzeichnis

3.1	Übersicht der in dieser Arbeit verwendeten Membrandatensätze zur Generierung realer Membranstrukturen. Für jede Membranprobe werden das bildgebende Verfahren, die zugehörige Bildauflösung und die experimentell ermittelte Porosität $\epsilon_{\text{Exp.}}$ dargestellt. Zusätzlich wird die Kantenlänge des analysierten quadratischen Ausschnitts in der lateralen Ebene für jede Probe angegeben.	41
5.1	Gegenüberstellung der computergestützten und experimentellen Methoden zur Berechnung eines gemittelten geometrischen Porenradius in realen Membranproben. Die experimentellen Werte und digitalen Zwillinge der Proben A, B und C stammen aus [3].	88
5.2	Vergleich der berechneten Permeabilitätswerte, ermittelt durch die Simulation der einphasigen Strömung in einem Porennetzwerkmodell (K_{PNM}) und auf einem vollständig aufgelösten voxelbasierten Gitter ($K_{\text{Vox.}}$) für die vier realen Membranproben A, B, C und D. Zudem werden der festgestellte Anisotropiegrad $DA_{\text{lat.}}$, die Porosität ϵ und die Tortuosität τ dargestellt.	101
5.3	Permeabilitätswerte, errechnet durch die Simulation der einphasigen Strömung in einem Porennetzwerkmodell (K_{PNM}^*), nachdem die in Abbildung 5.12c1) dargestellten Strukturartefakte bei den Membranproben A und B entfernt wurden. Zusätzlich ist die nach der Filterung berechnete Porosität ϵ^* aufgeführt.	103

6.1	Eigenschaften der in dieser Arbeit verwendeten Newtonschen Fluide Wasser und <i>Porefil</i> ®.	110
6.2	Geometrie- und Phasenparameter der Simulation des Kapillaranstiegs von Wasser in einer Kapillare unter Berücksichtigung der Gravitation.	118
6.3	Alle relevanten Simulationsparameter, welche in der Validierungsstudie zur Berechnung eines effektiven Porenradius verwendet wurden.	121
6.4	Auflistung der relevanten Strukturparameter: Porosität ε , mittlerer geometrischer Porenradius r_p , mittlerer Stegradius r_s sowie der richtungsabhängigen Eigenschaften Permeabilität K , Tortuosität τ und effektiver Porenradius r_{eff} in Produktionsrichtung (PR) und quer zur Produktionsrichtung (QR). Die Proben A, B und C stammen aus [3].	123
6.5	Gezeigt werden die gemittelten Benetzungseigenschaften beim Wicking mit destilliertem Wasser, welche mit der Methode aus Abschnitt 6.4 bestimmt wurden. Für die Proben A und B wurden die experimentelle Daten aus [3] verwendet.	131
6.6	Gegenüberstellung der Messung des geometrischen Porenradius r_p mit dem prognostizierten geometrischen Porenradius $r_p(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Die Porosität ε , der mittlere Stegradius r_s und der geometrische Porenradius r_p wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt, während $r_p(r_s, \varepsilon)$ berechnet wird. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert des geometrischen Porenradius.	137

6.7 Gegenüberstellung der Messung der spezifischen Oberfläche S_V mit der prognostizierten spezifischen Oberfläche $S_V(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ε welche zur Berechnung von $S_V(r_s, \varepsilon)$ verwendet wurden, wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert der spezifischen Oberfläche. 139

6.8 Gegenüberstellung der Messung der Tortuosität τ mit der prognostizierten Tortuosität $\tau(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ε welche zur Berechnung von $\tau(r_s, \varepsilon)$ verwendet wurden, wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert der Tortuosität. . . . 141

6.9 Gegenüberstellung der Messung der Permeabilität K mit der prognostizierten Permeabilität $K(r_s, \varepsilon)$ für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ε , welche zur Berechnung von $K(r_s, \varepsilon)$ verwendet wurden, wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt und können Tabelle 6.6 entnommen werden. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert der Permeabilität. 143

6.10 Gegenüberstellung des gemessenen und prognostizierten effektiven Porenradius für die Membranproben A, B, C, D, E, F und G. Der mittlere Stegradius r_s und die Porosität ε wurden in den rekonstruierten digitalen Zwillingen der Proben ermittelt. Die letzte Spalte zeigt die relative Abweichung zwischen dem gemessenen und prognostizierten Wert des effektiven Porenradius. 145

A Anhang

Beiträge in Printmedien

- P. Lemke, L. Schneider, **W. Kunz**, A. Rieck, P. Jäger, A. Bruckmann, B. Nestler, K. Rabe, C. Niemeyer “Flow-Induced Microfluidic Assembly for Advanced Biocatalysis Materials”, *Advanced Functional Materials*, 2313944, 2024.
- B. Nestler, F. Finsterwalder, L. Wallat, L. Griem, **W. Kunz**, M. Reder, J. Holland-Cunz, F. Jamshidi, M. Selzer, “Neue Materialien mit poröser Mikrostruktur: Beschleunigte Entwicklung durch Simulationen und Datenanalyse”, *Athene - Magazin der Heidelberger Akademie der Wissenschaften* 2/2023, November 2023
- **W. Kunz**^{*}, P. Altschuh^{*}, M. Bremerich, M. Selzer, B. Nestler, "Establishing structure–property linkages for wicking time predictions in porous polymeric membranes using a data-driven approach". *Materials Today Communications*, 35, 106004, 2023. (* geteilte Hauptautorenschaft)
- F. Jamshidi, **W. Kunz**, P. Altschuh, T. Lu, M. Laqua, A. August, B. Nestler, "A 3D computational method for determination of pores per inch (PPI) of porous structures". *Materials Today Communications*, 34, 105413, 2023.
- P. Altschuh^{*}, **W. Kunz**^{*}, M. Bremerich, A. Reiter, M. Selzer, B. Nestler, "Wicking in porous polymeric membranes: Determination of an effective capillary radius to predict the flow behavior in lateral flow assays". *Membranes*, 12(7), 638, Juni 2022. (* geteilte Hauptautorenschaft)

- F. Jamshidi, **W. Kunz**, P. Altschuh, M. Bremerich, R. Przybylla, M. Selzer, B. Nestler, "Geometric flow control in lateral flow assays: Macroscopic single-phase modeling". *Physics of Fluids*, 34, 062110, Juni 2022.
- P. Altschuh, **W. Kunz**, M. Selzer, E. Martens, B. Nestler, "Datengetriebene Analyse der Flüssigkeitsausbreitung in porösen Mikrostrukturen". *Forschung aktuell*, 2020.
- J. Hötzer, M. Kellner, **W. Kunz**, B. Nestler, "Investigation of the microstructure adjustment by velocity variations during the directional solidification of Al-Ag-Cu with the phase-field method". In *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* (Vol. 529, No. 1, p. 012007), 2019.
- M. Kellner, **W. Kunz**, P. Steinmetz, J. Hötzer, B. Nestler, "Phase-field study of dynamic velocity variations during directional solidification of eutectic NiAl-34Cr". *Computational Materials Science*, 145, 291-305, 2018.
- M. Kellner, J. Hötzer, P. Steinmetz, K. Dargahi Noubary, **W. Kunz**, B. Nestler, "Phase-field study of microstructure evolution in directionally solidified NiAl-34Cr during dynamic velocity changes". *Solidification Processing 2017: Proceedings of the 6th Decennial International Conference on Solidification Processing*, London, pp. 372–375, BCAST, Brunel University of London, 2017

Konferenzbeiträge

- **W. Kunz**, A. Ernst, B. Nestler, "Establishing a data-driven structure-wicking relationship for porous membranes". *ICMSN-2023*, Rom, Italien, 2023, Vortrag
- **W. Kunz**, P. Altschuh, M. Bremerich, M. Selzer, B. Nestler, "Establishing structure-property linkage for wicking time prediction in porous polymeric membranes by data processing workflows". *Euromembrane*, Sorrento, Italien, 2022, Poster

- **W. Kunz**, F. Jamshidi, B. Nestler, "Störungen in porösen Membranen". Kolloquium MDM - Simulation von Filtern, Schäumen und Membranen, Oktober 2022, Vortrag
- **W. Kunz**, M. Laqua, P. Altschuh, M. Bremerich, M. Selzer, B. Nestler, "Computer-aided characterisation of open-pored porous membranes using pore network modeling". Euromembrane, Kopenhagen, Dänemark, 2021, Poster
- A. A. Gonzalez, **W. Kunz**, F. Jamshidi, P. Altschuh, A. Reiche, M. Bremerich, M. Selzer, B. Nestler, "Lateral flow assay optimization by means of digital modeling", Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, Potsdam, Deutschland, März 2019, Poster

Veröffentlichte Datensätze

- **W. Kunz**, P. Altschuh, "Source data belonged to "Establishing structure-property linkages for wicking time predictions in porous polymeric membranes using a data-driven approach"", Zenodo, Oktober 2022, <https://doi.org/10.5281/zenodo.7220573>
- F. Jamshidi, **W. Kunz**, P. Altschuh, M. Bremerich, R. Przybylla, M. Selzer, B. Nestler, "Source data belonged to "Geometric flow control in lateral flow assays: Macroscopic single-phase modeling"", Zenodo, Juni 2022, <https://doi.org/10.5281/zenodo.6389659>

Betreute studentische Arbeiten

- A. Mohammadian Rasnani, "Computergestützte Segmentierung und Charakterisierung eines Flüssigkeitstropfens auf einer porösen Membran", Masterarbeit, 2023

- M. Adler, "Modellierung und Simulation von zweiphasigen Benetzungsvorgängen mithilfe der Phasefeldmethode", Bachelorarbeit, 2023
- T. Lu, "Räumliche Verteilung von Poren in porösen Materialien", Masterarbeit, 2022
- F. Lehnerer, "Erweiterung eines graphenbasierten Generierungsalgorithmus zur Rekonstruktion poröser Strukturen", Projektarbeit, 2022
- G. Thimm, "Parallelisierung des Extractnetwork-Tools aus Pace3D", Projektarbeit, 2022
- F. Lehnerer, "Optimierung eines Generierungsalgorithmus zur graphenbasierten Rekonstruktion poröser Membranen", Projektarbeit, 2022
- L. Karle, "Implementierung einer benutzerfreundlichen GUI zur Auslegung von Diagnostikmembranen", Projektarbeit, 2022
- M. Kucher, "Projektarbeit Füllalgorithmen", Projektarbeit, 2021
- J. Bräuning, "Algorithmen basierte Generierung poröser Strukturen auf der Grundlage von definierten Charakteristiken", Projektarbeit, 2021
- H. Aller, "Analyse und Validierung eines Porennetzwerkmodells durch die simulative Untersuchung der Flüssigkeitsströmung in porösen Strukturen", Bachelorarbeit, 2020
- A. Boos, "Implementierung eines Auswertungswerkzeuges zur Analyse von Porennetzwerkmodellen", Projektarbeit, 2020
- M. Laqua, "Entwicklung eines Algorithmus zur Überführung einer offenenporigen und hochporösen Mikrostruktur in ein Porennetzwerkmodell", Masterarbeit, 2020