

# TECHNISCHE UNIVERSITÄT MÜNCHEN

## Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde

### Die Reinigbarkeit technischer Oberflächen im immmergierten System

Ulrich Bobe

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Ernährung, Landnutzung und Umwelt der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktor-Ingenieurs

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. U. Kulozik

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr. K. Sommer (i.R.)
2. Univ.-Prof. Dr. W. Peukert  
(Friedrich-Alexander Universität Erlangen-Nürnberg)
3. Univ.-Prof. Dr. H.-Chr. Langowski

Die Dissertation wurde am 28.04.2008 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Ernährung, Landnutzung und Umwelt am 05.08.2008 angenommen.

## **Vorwort**

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als Doktorand am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde (MAK). Da ich in dieser Zeit viel Unterstützung erhalten habe, möchte ich mich bei allen bedanken, die zu dem Gelingen und dem erfolgreichen Abschluss dieser Arbeit beigetragen haben.

Meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. Karl Sommer danke ich herzlichst für die einmalige Chance, dass ich an seinem Lehrstuhl promovieren durfte. Während meiner gesamten Zeit am MAK spürte ich stets sein Vertrauen und konnte immer meine eigenen Vorstellungen und Ideen verfolgen. Fachlich wie menschlich ist diese Zeit für mich äußerst wertvoll und spannend gewesen.

Meinen Zweitprüfern Herrn Prof. Dr.-Ing. Wolfgang Peukert und Herrn Prof. Dr. rer. nat. Horst-Christian Langowski sowie dem Prüfungsvorsitzenden Herrn Prof. Dr.-Ing. Ulrich Kulozik danke ich für die Übernahme des jeweiligen Amtes.

Da meine Arbeit auch immer von spezieller Werkstattarbeit geprägt war, möchte ich mich sehr bei dem Team von Herrn Rauscher und allen ehemaligen Lehrlingen, v.a. Lukas und Matthias, bedanken. Ohne die oft rasche Hilfe wäre vieles während dieser Arbeit nicht so gut verlaufen.

Meinen Kollegen am MAK danke ich für viele unvergessliche Jahre, für eine tolle Atmosphäre und hoffe, dass der Kontakt noch über die Promotionszeit lange und rege erhalten bleibt. Besonders bedanke ich mich in diesem Zuge bei meinem singenden Bürokollegen Hans Scheuren, mit dem ich neben fachlichen Diskussionen auch immer viel Spaß haben konnte. Weiterhin schulde ich sehr großen Dank meinen ehemaligen Kollegen und Freunden Bernhard Weigl und Gerhard Niederreiter, ohne die ich diesen Weg der Promotion bestimmt nie eingeschlagen hätte!

Da ich all die Jahre von Studenten im Rahmen von Austauschprogrammen und Semester-, Studien- Bachelor-, Master- und Diplomarbeiten unterstützt wurde, bedanke ich mich bei allen und besonders bei Martin Neumann, Regina Fuchs, Kristof Knettel, Michael Schweitzer, Katharina Jiptner, Dario Cotterchio und Kalin Kinov für die Zusammenarbeit.

Im Rahmen meiner zwei AiF-Forschungsprojekte habe ich auch die Hilfe der anderen Forschungsstellen erhalten, weshalb ich mich bei Frau Nadja Gamer, Herrn Tillmann Wegwerth, Frau Bettina Winzer, Frau Claudia Kassen, Frau Gabriela Schaule, Herrn Martin Stratmann und v.a. bei Herrn Dr. Uwe Beck bedanke. Herrn Dr. Kohler und allen weiteren Mitgliedern des projektbegleitenden Ausschusses danke ich, dass sie zu dem Gelingen der Forschungsprojekte beigetragen haben.

Ich danke meiner gesamten Familie, die mir in all diesen Jahren immer zur Seite stand. Meiner Schwiegermutter Christine danke ich für die schnelle Hilfe des Korrekturlesens.

Besonders meiner lieben Frau Vicky danke ich, die mich v.a. in den letzten Monaten dieser Arbeit immer entlastet hat und ich mich voll auf meine Dissertation konzentrieren konnte.

Meinen Eltern Renate und Gerhard danke ich von ganzem Herzen, dass sie mich immer unterstützt und mir diesen Lebensweg ermöglichen haben.

Euch widme ich diese Arbeit.

## Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b> .....	<b>1</b>
1.1	Die wirtschaftliche Bedeutung der Reinigung .....	2
1.2	Reinigung und Reinigbarkeit .....	3
1.3	Problemstellung.....	5
<b>2</b>	<b>Kenntnisstand</b> .....	<b>7</b>
2.1	Abgrenzung zu Vorbildern aus der Natur .....	7
2.2	Bisherige Reinigungsuntersuchung.....	7
<b>3</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b> .....	<b>9</b>
3.1	Reinigung, Haftkräfte und Diffusion.....	9
3.2	Haftkräfte zwischen Verschmutzung und Wand.....	11
3.2.1	Ursache und Grundlagen der Van der Waals Kraft.....	13
3.2.1.1	Die mikroskopische Theorie nach Hamaker .....	13
3.2.1.2	Die makroskopische Theorie nach Lifshitz .....	16
3.2.2	Grundlagen der elektrostatischen Kräfte.....	17
3.2.3	Differenzierung der Kräfte für unterschiedliche Haftsysteme .....	22
3.3	Die Abhängigkeit der Haftkraft von ihren Parametern .....	26
3.3.1	Der Einfluss des Oberflächenmaterials.....	26
3.3.1.1	Auswirkungen durch die Oberflächenenergie.....	26
3.3.1.2	Einflüsse durch das Zetapotential einer Oberfläche .....	30
3.3.2	Auswirkungen auf die Haftung durch das Reinigungsmedium.....	32
3.3.3	Die theoretische Abhängigkeit von der Rauheit der Werkstoffoberfläche .....	34
3.3.3.1	Definitionen und Messmethoden der Oberflächenrauheit.....	34
3.3.3.2	Beeinflussung der Haftkräfte durch die Rauheit .....	37
3.3.4	Haftkraftverstärkungen durch Verformung der Kontaktpartner .....	43
3.4	Relevante Grundlagen der Strömungslehre .....	46
3.5	Die Kraftübertragung durch das strömende Fluid.....	48
3.6	Die diffusive Auflösung von Rückständen .....	52

---

3.6.1	Die Fickschen Gesetze als Grundlage des Stoffübergangs.....	52
3.6.2	Der Stoffübergang in die bewegte Reinigungsflüssigkeit.....	54
<b>4</b>	<b>Material und Methoden .....</b>	<b>57</b>
4.1	Die untersuchten Werkstoffoberflächen .....	57
4.1.1	Edelstahloberflächen .....	57
4.1.2	Weitere relevante Oberflächen der Lebensmittelindustrie .....	59
4.1.3	Herstellung speziell strukturierter Oberflächen .....	61
4.2	Die verwendeten Verschmutzungsarten.....	63
4.2.1	Verschmutzung mit partikulären Verunreinigungsarten .....	64
4.2.2	Die Herstellung von Schmutzfilmen .....	66
4.3	Reinigung in der Strömungszelle.....	68
4.3.1	Der Aufbau der Strömungszelle.....	69
4.3.2	Durchführung der Reinigungsversuche.....	71
4.3.3	Analyse des Reinigungserfolges.....	72
4.4	Reinigbarkeitsuntersuchungen mit dem EHEDG-Teststand.....	73
4.4.1	Aufbau des EHEDG-Teststandes .....	73
4.4.2	Durchführung der Reinigungstests .....	74
<b>5</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion .....</b>	<b>77</b>
5.1	Untersuchungen der Oberflächenparameter .....	77
5.1.1	Einfluss der Oberflächenrauheit auf die Reinigbarkeit .....	77
5.1.1.1	Reinigungsverhalten filmartiger Verschmutzungen in Abhängigkeit der Rauheit .....	77
5.1.1.2	Auswirkung der Oberflächenrauheit auf die Einzelpartikelablösung .....	83
5.1.1.3	Vergleich der Versuchsergebnisse mit AFM- Messungen.....	87
5.1.2	Einführung des Particle-Size-Effect bei der Einzelpartikelablösung .....	91
5.1.3	Das Oberflächenmaterial bzw. die Oberflächenenergie als Parameter der Reinigbarkeit .....	93
5.1.4	Sonderstellung der Emaille-Oberfläche .....	95

---

<b>6 Zusammenfassung und Ausblick .....</b>	<b>97</b>
<b>7 Summary .....</b>	<b>100</b>
<b>8 Literaturverzeichnis .....</b>	<b>103</b>
<b>9 Anhang.....</b>	<b>112</b>
<b>10 Lebenslauf .....</b>	<b>117</b>

## Abkürzungsverzeichnis

### Lateinisches Alphabet

a	Abstand
A	Fläche
$A_s$	Querschnittsfläche des Kanals
$a_0$	Anpassungsparameter „Kontaktabstand“
b	Breite
c	Konzentration
C	Interaktionskonstante der Polarisierbarkeit
d	Partikeldurchmesser
$d_z$	Rohrdurchmesser
$d_g$	Gleichwertiger Durchmesser
D	Diffusionskonstante
e	Elementarladung
E	Elastizitätsmodul
E	Energie
$E_{\text{Elektrostatik}}$	Elektrostatische Abstoßungsenergie
$E_{\text{Kugel}}$	Elastizitätsmodul der Kugel
F	Kraft
H	Hamaker Konstante
$H_{11}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 1 und Stoff 1
$H_{12}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 1 und Stoff 2
$H_{13}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 1 und Stoff 3
$H_{131}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 1 und Stoff 1 umgeben von Fluid 3
$H_{132}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 1 und Stoff 2 umgeben von Fluid 3
$H_{22}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 2 und Stoff 2
$H_{23}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 2 und Stoff 3
$H_{33}$	Hamaker Konstante zwischen Stoff 3 und Stoff 3
J	Teilchenstromdichte (Flux)
k	Boltzmann Konstante
L	Länge einer Meßstrecke
$L_b$	Benetzte Länge
l	Länge der Meßstrecke für die Rauheitsmessung
m	Masse
n	Ionenkonzentration (Anzahl pro Volumeneinheit)
Nu	Nusselt-Zahl

---

$p, P$	Druck
$p_{\max}$	Maximale Spannung in einer Partikel
$p_{pl}$	Kritische Spannung bzw. Fließgrenze, ab welcher plastische Verformung eintritt
$Pr$	Prandtl-Zahl
$Q$	Punktladung
$Q_0$	Anzahl-Summenverteilung
$q_1$	Anzahl der Atome bzw. Moleküle pro Volumeneinheit
$r$	Radius der Rauheit
$r_a$	Radius des Kontaktkreises
$R$	Radius einer Partikel / Rohrradius
$R_a$	Arithmetischer Mittenrauhwert
$R_q$	Quadratischer Mittenrauhwert (= rms)
$Re$	Reynoldszahl
$Re_{krit}$	Kritische Reynoldszahl
rms	<u>r</u> oot <u>m</u> ean <u>s</u> quare average (= $R_q$ )
$s$	Höhe
$Sc$	Schmidt-Zahl
$Sh$	Sherwood-Zahl
$T$	Absolute Temperatur
$t$	Zeit
$U_k$	Kontaktpotential
$U$	Umfang des Kanalquerschnitts
$w$	Mittlere Geschwindigkeit der Strömung im Kanal
$W$	Arbeit / Energie
$x$	Abstand
$Z(x)$	Profilabweichung
$z_i$	Wertigkeit der Ionen

## Griechisches Alphabet

$\alpha$	Temperaturleitzahl
$\beta$	Stoffübergangskoeffizient
$\gamma$	Oberflächenenergie
$\gamma_l$	Oberflächenspannung einer Flüssigkeit
$\gamma_{l,g}$	Oberflächenspannung zwischen Flüssigkeit und Gas (liquid-gas)
$\gamma_{l,s}$	Grenzflächenspannung zwischen Flüssigkeit und Festkörper (liquid-solid)
$\gamma_{l,v}$	Grenzflächenspannung zwischen Flüssigkeit und Vakuum (liquid-vacuum)
$\gamma_s$	Oberflächenenergie eines Festkörpers
$\rho$	Dichte
$\delta$	Dicke der diffusen Schicht
$\delta_0$	Abstand zweier Moleküle bei dichtester Kugelpackung
$\delta_S$	Dicke der laminaren Unterschicht
$\delta_{Diff}$	Dicke der diffusiven Grenzschicht
$\epsilon$	Dielektrizitätskonstante
$\epsilon(i\xi)$	Frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante
$\epsilon_0$	Elektrische Feldkonstante
$\eta$	Dynamische Viskosität
$\theta$	Winkel zwischen Flüssigkeit und Feststoff (Kontaktwinkel)
$\lambda$	Rohrreibungszahl
$\lambda_l$	Leitfähigkeit
$\nu_p$	Poissonzahl
$\nu$	Kinematische Viskosität
$\zeta$	Zeta-Potential
$\tau_w$	Wandschubspannung
$\varphi_1$	Flächenladungsdichte des Stoffes 1
$\varphi_2$	Flächenladungsdichte des Stoffes 2
$\varphi_{max}$	Maximale Flächenladungsdichte
$\psi_0$	Nernst-Potential
$\psi_s$	Stern-Potential
$\psi_i$	Potential der inneren Helmholtzschicht
$\hbar \varpi$	Lifshitz Konstante
$\left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)_w$	Geschwindigkeitsgradient der Strömung an der Wand

---

**Sonstige**

A:CH	Amorpher Kohlenstoff
AFM	<u>A</u> tomic <u>F</u> orce <u>M</u> icroscope
CIP	<u>C</u> leaning <u>I</u> n <u>P</u> lace
DLVO	<u>D</u> erjaguin, <u>L</u> andau, <u>V</u> erwey, <u>O</u> verbeek
DMT	<u>D</u> erjaguin- <u>M</u> uller- <u>T</u> oporov
EHEDG	<u>E</u> uropean <u>H</u> ygienic <u>E</u> ngineering and <u>D</u> esign <u>G</u> roup
EPS	<u>E</u> xtrazelluläre <u>P</u> olymere <u>S</u> ubstanzen
HMDSO	<u>H</u> examethyl <u>d</u> isiloxan
JKR	<u>J</u> ohnson- <u>K</u> endall- <u>R</u> oberts
PTFE	<u>P</u> olytetrafluorethen
SiO <sub>2</sub>	Siliziumdioxid

## 1 Einleitung

Die Frage nach der Reinigbarkeit von technischen Oberflächen ist ein zentrales Thema jedes Produktionsprozesses. Besonders für die Betriebe, die Produkte für den menschlichen Verzehr oder die Verwendung am/im Menschen herstellen, ist eine „ausreichende“ Reinigung Pflicht, da andernfalls Produktverderb oder Kreuzkontaminationen möglich sind. In großen Produktionsanlagen, wo die Reinigung und deren Kontrolle aus Gründen des zeitlichen und personellen Aufwandes nicht mehr von Hand durchgeführt werden kann (CIP-Reinigung), ist es von äußerstem Interesse, zu wissen, welche Oberflächen sich ausschließlich durch Strömungskräfte und chemische Einwirkung besonders leicht reinigen lassen, da dies die qualitative Sicherheit der Produkte deutlich steigern würde.

Durch rechtliche Auflagen, wie beispielsweise durch verschiedene Normen [23] [25] [26] [27] [28] [29], soll ein Beitrag zu dieser Sicherheit geleistet werden, indem sowohl Hersteller von Nahrungsmittelmaschinen als auch die Nahrungsmittelproduzenten die Reinigbarkeit ihrer Komponenten bzw. Anlagen gewähren müssen. Im Rahmen der reinigungsgerechten Gestaltung dieser Bauteile und ganzer Produktionslinien gibt es deswegen Vorschriften für die Qualität der produktberührenden Oberflächen, die mindestens gewährleistet werden muss. Die EU-Maschinenrichtlinie schreibt für Nahrungsmittelmaschinen eine maximale Rauheit der produktberührenden Oberflächen von  $R_a = 0,8 \mu\text{m}$  vor [79]. Das Produzieren von sensiblen Produkten, z.B. von Pharmazeutika, in einer geforderten Sterilklassen bedingt ebenfalls eine bestimmte Rauheit der produktberührenden Flächen (Tabelle 1.1).

**Tabelle 1.1: Geforderte Rauheiten für produktberührende Oberflächen in Abhängigkeit der Sterilklassen [120]**

Sterilklassen	Mittenrauhwert $R_a$ DIN 4768/1	Gemittelte Rauhtiefe $R_z$ DIN 4768
1	unbearbeitet	unbearbeitet
2	3,2	16
3	1,6	6,3
4	0,8	4
5	0,4	2,5
6	0,2	1,6
7	Nach freier Vereinbarung	

Diese Grenzwerte sind jedoch nicht wissenschaftlich belegt und das Unterschreiten bedarf oft einer zeitaufwendigen und kostenintensiven Bearbeitung bzw. Veredelung der Oberflächen, beispielsweise durch Schleifen oder Elektropolieren (Abbildung 1.1).

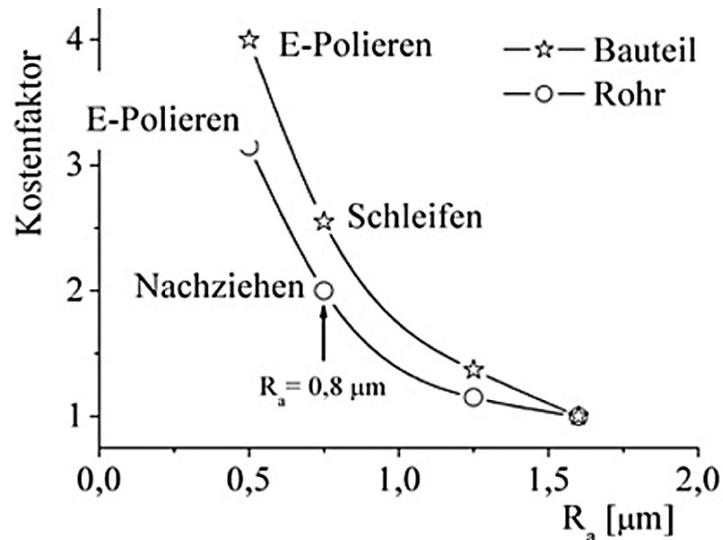


Abbildung 1.1: Kostenfaktoren für die Nachbearbeitung von Bauteiloberflächen [67]

Daher sind z.B. Erkenntnisse über den Einfluss der Oberflächenrauheit auf die Reinigbarkeit von direktem und wertvollem Nutzen für die Industrie.

Aber nicht nur die Rauheit ist im Fokus bei der Auswahl des am besten geeigneten Werkstoffes. Angeheizt durch Vorbilder aus der Natur ist die Nachfrage nach neuen Oberflächenmaterialien und speziell gestalteten Oberflächen, sog. „easy-to-clean“ oder „self-cleaning“ Oberflächen, stark gestiegen. Die Entschlüsselung des „Lotuseffektes ©“ durch Prof. W. Barthlott [6] als Oberflächenstruktur-Effekt steigert den Wunsch und das Bedürfnis, ähnliche Resultate auch für die Reinigung im industriellen Bereich wirksam werden zu lassen.

## 1.1 Die wirtschaftliche Bedeutung der Reinigung

Nicht nur rechtliche Auflagen erfordern eine ausreichende Reinigung, sondern auch aus technisch-wirtschaftlicher Sicht ist es notwendig, durch die Reinigung einen sicheren Prozess und ein möglichst lange haltbares Produkt zu gewährleisten [130]. Neben den Kosten für die Herstellung einer Lebensmittelanlage (Abbildung 1.1) entstehen in der Lebensmittelindustrie jährlich hohe Verluste durch Kontamination bzw. Carry-over, deren Ursache häufig eine mangelhafte Reinigung ist. Die Folge sind nicht nur unbrauchbare Produkte, die entweder rechtzeitig während des Herstellungsprozesses erkannt werden oder nachträglich durch aufwendige

Rückrufaktionen aus dem Handel genommen werden müssen, sondern auch die daraus resultierenden Imageverluste. Letztere sind als monetäre Kosten nicht annähernd zu beziffern.

Neben der mangelhaften Reinigung bringt auch die erfolgreiche Reinigung im Sinne der Wertschöpfung Kosten mit sich. Während der Reinigungsprozedur einer Anlage steht diese der Produktion nicht zur Verfügung. Diese Stillstandzeiten und die Kosten für Energie und Reinigungsmittel bedeuten für das Unternehmen eine verminderte Produktivität der Anlage und somit im Vergleich zu einem optimalen Herstellungsprozess Kosten bzw. Verluste. Werden diese Stillstandzeiten minimiert, so kann der Hersteller die Effizienz seiner Anlage und seine technische Produktivität steigern. Die Folge sind ökonomische Vorteile.

Diese Minimierung kann prinzipiell auf zwei grundlegend unterschiedlichen Wegen erreicht werden. Eine Verringerung der Stillstandzeiten kann erfolgen, indem die Oberflächen während des Produktionsprozesses vergleichsweise langsamer verschmutzt werden (Fall 1), was eine minimierte Anzahl von Reinigungsintervallen bedeutet. Die zweite Möglichkeit besteht darin, den gewünschte Reinigungserfolg einer verschmutzten Oberfläche schneller, mit weniger Energie oder mit einem geringeren Reinigungsmiteleinsatz zu erreichen (Fall 2).

Dabei muss jeder Hersteller stets für sich selbst den gewünschten Reinigungserfolg definieren, der ihm ein nach Verbraucherschutzkriterien sicheres Produkt liefert. Hintergrund dieser Definition ist, dass mit absoluter Sicherheit nie eine 100 prozentige Reinigung einer Anlage erreicht werden kann. Je nach Auflösungsvermögen der bewertenden Testmethode können Restverschmutzungen detektiert werden oder nicht. Im Falle des Negativ-Befundes „sauber“ heißt das jedoch nicht, dass sich mit einer anderen, höher auflösenden Methode (z.B. im molekularen Bereich) an gleicher oder anderen Stelle der Anlage nicht doch noch ein positiver Befund ergeben kann. Aus diesem Grund werden in vielen Fällen Anlagen nach der Reinigung zusätzlich sterilisiert, was ebenfalls Kosten verursacht. Durch diese Maßnahme wird die Produktionslinie zwar hinsichtlich Produktverderb gesichert, jedoch wird sie nicht gereinigt. Die sterilisierten Rückstände können sowohl den Wirkungsgrad der Anlage (z.B. bei Wärmetauscherflächen) minimieren als auch der nächsten Kontamination als Nahrungsquelle oder Haftunterlage dienen. Diese Folgen unterstreichen die Wichtigkeit und Notwendigkeit eines hohen Reinigungserfolges, um einen Sterilisationsschritt nach Möglichkeit zu umgehen.

## 1.2 Reinigung und Reinigbarkeit

Reinigung ist ein Begriff, für den es viele Definitionen gibt [15] [63] [97] [98] [110]. Da die Definition auch von dem Anwendungsgebiet abhängt, wird folgendes exzerpiert und im Rahmen dieser Arbeit verwendet:

Reinigung ist die möglichst vollständige und möglichst dauerhafte Trennung von mindestens zwei Stoffen, die aneinander haften. Nach der Reinigung soll der Werkstoff „rein“ sein, was in Anlehnung an MITTAL [82] der Fall ist, wenn:

- Die Oberfläche die nachfolgenden Vorgänge (z.B. Wärmeübertragung, Trennvorgänge) nicht beeinträchtigt.
- Die zukünftige Zuverlässigkeit des Produktes, für das die Oberfläche gebraucht werden soll, gewährleistet wird.

Aufgrund der Tatsache, dass die beiden grundlegend verschiedenen Fälle 1 und 2 der Reinigung (siehe Kap. 1.1) zu dem gleichen Ergebnis der Effizienzsteigerung führen, treten immer wieder Verwechslungen und Verwirrungen bei der Beurteilung von Oberflächenparametern und deren Auswirkung für die Reinigung auf. In Fall 1 handelt es sich um die Verschmutzungsneigung einer Oberfläche. In solchen Untersuchungen wird bewertet, welche Eigenschaften einer Oberfläche sich positiv oder negativ auf das zeitliche Anhaften oder An- bzw. Aufwachsen von Kontaminationen auswirken. In Fall 2 wird von einer bereits verschmutzten Oberfläche ausgegangen und es werden die Parameter gesucht, welche Einfluss auf das Enthafte bzw. das Abtrennen, Ab- und Auflösen oder Entfernen des Schmutzes haben und somit die Reinigbarkeit dieser Oberfläche bestimmen. Theoretisch kann es eine Schnittmenge an Parametern geben, die sowohl die Verschmutzungsneigung reduzieren als auch die Reinigbarkeit steigern. Es muss aber dennoch streng unterschieden werden, ob die Verschmutzungsneigung getestet wird oder die Reinigbarkeit. Der Schmutz, der sich nur langsam auf einer Oberfläche anlagert, kann sich genauso schwer wieder abreinigen lassen, wie von einer schnell zu verschmutzenden Oberfläche. Dagegen können Oberflächen der gleichen Verschmutzungsneigung unterschiedliche Reinigbarkeiten aufweisen.

Eine Reinigbarkeitsstudie beurteilt nicht, ob eine Oberfläche nach einer bestimmten Reinigungsprozedur sauber ist oder nicht. Sie bewertet vielmehr vergleichend, ob sich Rückstände bzw. Verschmutzungen von ihr besser reinigen lassen als von einer oder mehreren Referenzoberflächen. Da der Reinigungsvorgang aufgrund einer Vielzahl möglicher Einflussfaktoren äußerst komplex ist, müssen bei der Bewertung verschiedener Oberflächen alle Parameter, mit Ausnahme der zu untersuchenden Zielgröße, konstant gehalten werden. Nur innerhalb dieser Testreihe kann nun ausgesagt werden, ob die untersuchte Variable einen Einfluss auf die Reinigbarkeit hatte bzw. welche der getesteten Oberflächen die leichteste, höchste oder beste Reinigbarkeit besitzt. Aufgrund der Komplexität ist es nicht zielführend, Einzelergebnisse der einen Testreihe mit Einzelergebnissen anders gearteter Testreihen zu vergleichen.

### 1.3 Problemstellung

Ausgehend von den theoretischen Modellen der Haftkräfte zwischen Körpern ist das Ziel dieser Arbeit, erstmals durch strukturiertes Vorgehen die verschiedenen Oberflächenparameter einzeln dahingehend zu untersuchen, ob und wie sie die Reinigbarkeit einer Werkstoffoberfläche im immmergierten System beeinflussen.

Da nicht nur die produktberührende Werkstoffoberfläche selbst den Reinigungsvorgang determinieren kann, sondern auch die Verunreinigung und die Reinigungsflüssigkeit, ist die sich daraus ergebende Matrix aus möglichen Kombinationen zwischen Schmutz – Medium - Oberfläche theoretisch unendlich groß. Um die umfangreiche Komplexität des Reinigungsvorganges einzugrenzen, werden Oberflächen verwendet, die in der industriellen Produktion Anwendung finden (technische Oberflächen). Zur Beurteilung der Reinigbarkeit werden die möglichen Schmutzarten in drei Gruppen eingeteilt:

- **partikuläre Verunreinigungen**, welche die kleinste, nicht weiter auflösbare Verschmutzung darstellen (z.B. einzelne Zellen, Mikroorganismen, unlösliche Kristalle oder Partikeln).
- **kohäsive Schmutzfilme**, welche flächenartige, nicht auflösbare Verschmutzungen darstellen, die sehr resistent gegen das umgebende Medium sind (z.B. Biofilme).
- **chemisch lösliche Schmutzfilme**, welche zusammenhängende und flächendeckende Verschmutzungen darstellen, die durch Wasser und/oder Reinigungsmittel zersetzt und aufgelöst werden können (z.B. Produktreste der Lebensmittelindustrie).

Mit je einer reproduzierbaren Verunreinigungsart jeder Gruppe werden die Testoberflächen hinsichtlich ihrer Reinigbarkeit bewertet. Diese Unterscheidung ist notwendig, da für diese Verschmutzungsarten vollkommen unterschiedliche Haft- und Ablösungsverhalten erwartet werden. Die Ablösung der Einzelpartikel und des kohäsiven Schmutzfilms wird in einer Strömungszelle untersucht. Für die Bewertung der Reinigbarkeit bei Verschmutzung mit löslichen Schmutzfilmen wird auf einen bestehenden Versuchsaufbau zurückgegriffen, welcher eine CIP-Reinigung entspricht.

Da im Rahmen dieser Arbeit die Reinigbarkeiten der verschiedenen Oberflächen bewertet werden sollen, wird das Reinigungsmittel konstant gehalten. In den Versuchen wird Leitungswasser als strömendes und ablösendes Medium gewählt. Unter Verwendung verschiedener Kontaminationen ist das Ziel der Untersuchungen, Aussagen über die qualitativen und im Vergleich quantitativen Einflüsse der Oberflächenparameter auf die Reinigbarkeit von Werkstoffoberflächen zu treffen.

## 2 Kenntnisstand

### 2.1 **Abgrenzung zu Vorbildern aus der Natur**

Wie bereits erwähnt, gibt es in der Natur Systeme für leicht reinigbare bzw. selbstreinigende Oberflächen, wie beispielsweise die Oberflächen der Blätter der Lotus-Pflanze (Lotuseffekt). Die Reinigungswirksamkeit von Lotuseffektflächen beschränkt sich jedoch auf die Reinigung im Dreiphasensystem: Luft, Wasser, Werkstoff. Sie beruht auf der Kombination einer flüssigkeitsabweisenden Oberfläche mit einer regelmäßigen Struktur und der damit - fast unabhängig von anderen Benetzungseigenschaften - verbundenen Erhöhung des Randwinkels (Hydrophobierung, Lipophobierung etc.). Da fast alle Flüssigkeiten diese strukturierten Oberflächen nicht „benetzen“, reinigen die ablaufenden Tropfen die sich auf der Oberfläche befindenden Partikel ab. Die Partikel werden von der Flüssigkeit benetzt, aufgrund der Oberflächenspannung der Tropfen in diese aufgenommen und anschließend abtransportiert. Diese Effekte verlieren ihre Wirksamkeit im immmergierten System (Zweiphasensystem: Wasser und Werkstoff) und wenn sich Schmutzpartikel und Schmutzfilme zwischen den Strukturen ablagern. Heutzutage werden die industriellen Produktionsanlagen zum Reinigen nicht mehr in Einzelteile zerlegt und diese von Hand gesäubert (Dreiphasensystem). Stand der Technik ist aus Zeit- und Kosten-Gründen das Cleaning-in-Place (CIP) Verfahren. Diese Art der voll automatisierten Reinigung findet in einem Zweiphasensystem statt, in welchem nicht mehr Luft, sondern die wässrige Reinigungslösung die stationäre umgebende Phase darstellt, z.B. in Rohrleitungen. Die Lotusoberfläche besitzt in diesem immmergierten System zwar keine Wirkung mehr, aber das Beispiel, wie sehr die Oberflächenstruktur und ihre chemischen Eigenschaften die Reinigbarkeit beeinflussen, weckt das Interesse, herauszufinden, ob ähnliche Effekte für das Zweiphasensystem gefunden werden könnten.

### 2.2 **Bisherige Reinigungsuntersuchung**

Reinigung ist in der Lebensmittelindustrie seit langem ein schwieriges und oft kostenintensives Problem, zu dessen Lösung viele aus der Praxis geborene Untersuchungen existieren (z.B. mit Milch in Plattenwärmetauschern [45], mit Molke bei der Pasteurisierung [38]) ohne allgemeingültige und zufriedenstellende Lösungen zu gewährleisten. In der Literatur sind viele Arbeiten zu finden, welche die

Verschmutzungsneigung von verschiedenen Oberflächen untersuchten [4] [5] [35] [36] [92] [132]. Diese Ergebnisse dürfen jedoch nicht dazu verwendet werden, die Reinigbarkeit der Oberflächen zu beurteilen. Es muss klar voneinander getrennt werden, wann ein Parameter Einfluss auf die Anlagerung oder das Anwachsen von „Schmutz“ (z.B. Mikroorganismen oder Produktreste) hat und wann er die Reinigung/Haftkraft dessen beeinträchtigt. Untersuchungen des Ausspülverhaltens und Reinigungstests [61] liefern zwar Ergebnisse für Sauberheitskontrollen, jedoch blieben Hinweise über die Reinigbarkeit und über Einflüsse der Werkstoffeigenschaften bislang offen [16].

In Experimenten zur Untersuchung der Reinigbarkeit muss von einer reproduzierbaren vorhandenen Kontamination ausgegangen werden und die Ablösung des Schmutzes bei gleichen Versuchsbedingungen quantifiziert werden [7] [39] [75] [106] [125]. Diese Ergebnisse können miteinander verglichen werden.

In der Literatur sind bereits einzelne Untersuchungen zu finden, die sich mit der Messung von Trennkräften von Einzelpartikeln und der Restschmutzbestimmung bei Verwendung von flächenartigen Verunreinigungen befasst haben.

Grundlegende Arbeiten auf dem Gebiet des Partikelkontaktes wurden mittels AFM-Messungen durchgeführt [12] [13] [14] [39] [40]. Durch die Verwendung einer Flüssigkeitszelle können diese Messungen auch mit Fluiden als stationäre Phase durchgeführt werden. Der Nachteil der AFM-Messungen ist, dass sie nur durch einen sehr hohen Aufwand den Vergleich mehrerer Partikel ermöglichen, da jedes zu testende Partikel einzeln auf dem Cantilever fixiert werden muss.

Untersuchungen zur Ablösung bzw. Reinigung von unterschiedlichen Verschmutzungen der Lebensmittelindustrie wurden beispielsweise von GRASSHOFF [43] [44], WELCHNER [127], HOFFMANN [50] und LANGEVELD [74] durchgeführt. Während GRAßHOFF und WELCHNER die Reinigung von Komponenten mit unterschiedlichen Verschmutzungen auf der Basis von Milch testeten, haben HOFFMANN und LANGEVELD die Auswirkungen des Rauheitswertes auf die Sporenablösung untersucht. Danach ergibt sich keine signifikante Abhängigkeit der Restsporenmenge von der Rauheit.

Eine der wichtigsten und problematischsten Verunreinigungsarten tritt auf, wenn Partikeln, Zellen und Moleküle sich bei der Anhaftung auf Oberflächen gegenseitig „unterstützen“ [20] [34] [37] [93] [109]. Dabei ist ein Biofilm aufgrund seiner Möglichkeit zur Anpassung an Umgebungsbedingungen und somit zum gesteigerten Widerstand gegen Reinigungsmittel die am meisten gefürchtete Kontaminationsform. Untersuchungen von Biofilmen, speziell deren Aufbringung, Zusammensetzung und die Auswirkung des Umgebungsmediums auf die Rheologie der Biofilme, wurden von FLEMMING et al. durchgeführt [33] [112]. Zwar wurden die Auswirkungen von biofilm-tötenden Additiven auf die Zusammensetzung, die Stabilität und das

Reinigungsergebnis untersucht, jedoch wurde der Einfluss der Oberfläche, auf welcher der Film haftet, bisher nicht in die Untersuchungen mit einbezogen [33] [65].

### 3 Theoretische Grundlagen

Es existieren makroskopische Theorien, die zur Beschreibung und zur Berechnung der Haftkraft zwischen Festkörpern geeignet sind und den Vergleich mit Experimenten ermöglichen. Die Haftung jedoch, die die Berührung einzelner Atome beinhaltet, ist ein mikroskopisches Phänomen, das von einer makroskopischen Theorie nur durch Anpassung beschrieben werden kann [83].

Um die Parameter, welche die Haftkräfte beeinflussen, zu identifizieren und gezielt zu variieren, wird von den bekannten Theorien der Haftkräfte ausgegangen. Aufgrund der notwendigen Anpassungen ist es nicht das Ziel dieser Arbeit, die theoretischen Werte der Haftkräfte im Experiment zu bestätigen. Dies ist aufgrund der Tatsache, dass die Haftkräfte senkrecht und die relevanten ablösenden Strömungskräfte parallel zu der Oberfläche wirken, nicht mit absoluten Werten möglich. Vielmehr wird untersucht, wie relevant die Einflüsse der in den Theorien zugrundeliegenden Parameter für den realen Reinigungsfall sind. Es wird speziell auf die oberflächeneigenen Parameter (Rauheit, Oberflächenenergie, Zeta-Potential) eingegangen.

#### 3.1 **Reinigung, Haftkräfte und Diffusion**

Zu Beginn der Reinigung müssen oft Restmengen aus der Produktionsanlage ausgeschoben werden, wobei die Oberflächen der jeweiligen Armaturen nach wie vor von Produkt bzw. Kontaminationen belegt sind (Abbildung 3.1, 1.Vorgang). Die Werkstoffoberfläche wird erst dann gereinigt, wenn die auf ihr haftenden Restschmutzmengen (Abbildung 3.1, Zwischenzustand) beseitigt werden. Es gilt zu unterscheiden, ob die Kontaminationen von dem Reinigungsmedium aufgelöst oder abgelöst werden (Abbildung 3.1, 2.Vorgang). Mit AUFLÖSEN ist das „in Lösung gehen“ des Schmutzes, ein Wechsel des Aggregatzustands von fest zu flüssig (z.B. Zucker in Wasser) gemeint, während ABLÖSEN den Aggregatzustand des Schmutzes nicht verändert. Letzteres kann nur durch eine äußere angreifende Kraft erfolgen.

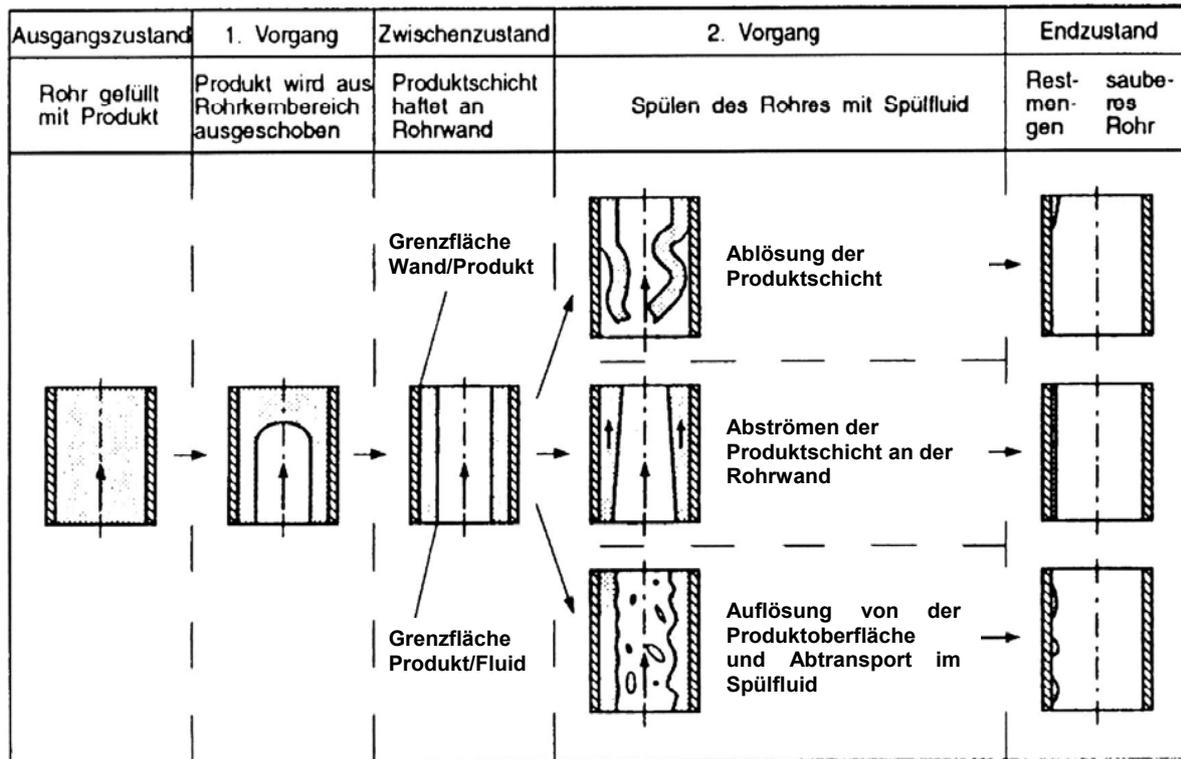


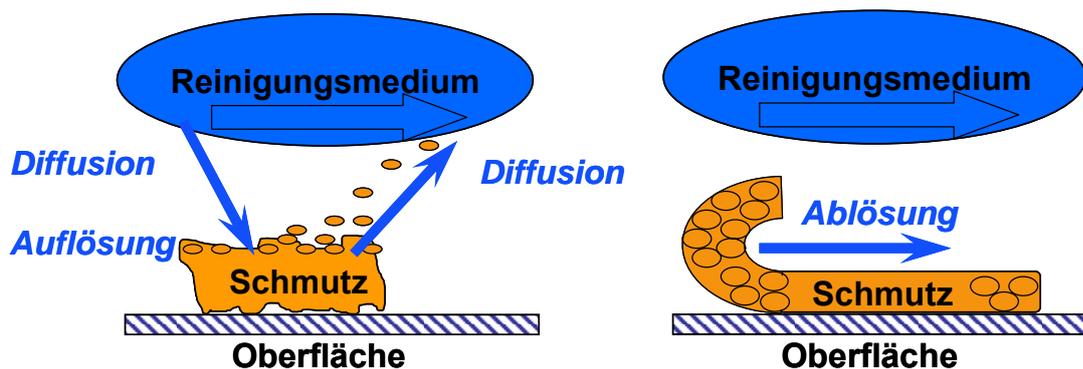
Abbildung 3.1: Unterscheidung der Reinigung nach Art der Schmutzablösung [127]

Zwischen dem Ablösen des Produktes (Grenzfläche Wand/Produkt) und dem Auflösen (Grenzfläche Produkt/Spülfluid) ist in Abbildung 3.1 das Abströmen des Produktes an der Rohrwand dargestellt, wobei sich die Schichtdicke des Belages lediglich verringert. Diese Möglichkeit ist nur solange eine dritte Variante der Reinigung, bis die letzte, unterste Schicht des Schmutzes erreicht ist. Diese kann aus Partikeln (Zellen, Mikroorganismen, Kristallen, etc.) zusammengesetzt sein oder als Film (homogen oder heterogen zusammengesetzt) vorliegen. Ob ein Schmutzbelag schichtweise oder zusammenhängend von der Oberfläche entfernt wird, hängt dabei von dem Verhältnis der Kräfte zwischen den einzelnen Schmutzmolekülen (kohäsive Kräfte) zu den Kräften zwischen Schmutzmolekülen und Werkstoffoberfläche (adhäsive Kräfte) ab. Ist die Kohäsion in dem Schmutzfilm größer als dessen Adhäsion zur Oberfläche, so werden bei ansteigender Krafteinwirkung durch das Fluid zuerst die kleineren, adhäsiven Kräfte überwunden. Der Film löst sich „wie ein Teppich“ von der Oberfläche ab. Dominieren die adhäsiven Kräfte, so wird sich der Schmutz schicht- oder elementweise ablösen, da zuerst die kohäsiven Kräfte überstiegen werden.

Da im Rahmen dieser Arbeit mit Reinigung der Oberfläche deren Säuberung gemeint ist, ist der Fall des schichtweisen Produktabtrages (mittlerer Fall in Abbildung 3.1) nicht relevant, da dadurch die Oberfläche noch nicht von dem Schmutz befreit wird.

Erst durch die Entfernung der letzten Schicht wird die Oberfläche gesäubert, was entweder wieder durch Ablösung oder durch Auflösung des Schmutzes geschehen kann.

Die Auflösung von Schmutz bzw. der Stoffübergang in das Fluid ist immer ein diffusionsgesteuerter Prozess, der in der praktischen Anwendung durch den Einsatz von Reinigungsmitteln und erhöhter Temperaturen herbeigeführt oder verstärkt wird. Der Schmutz löst sich chemisch an der Grenzfläche zum Reinigungsmedium auf und geht in die stationäre Phase über, bis die Oberfläche gesäubert ist. Abbildung 3.2 verdeutlicht nochmals die zwei unterschiedlichen Arten der Reinigung.



**Abbildung 3.2: Schematische Darstellung unterschiedlicher Reinigungsarten**  
Links: diffusive Reinigung, Rechts: haftkraftüberwindende Reinigung

Im rechten Teil der Abbildung 3.2 wird durch die Wandschubspannung des Fluids und deren hydrodynamische Kraft der Schmutzfilm im Ganzen von der Oberfläche (Grenzfläche Werkstoff/Schmutz) abgelöst. Der linke Teil verdeutlicht dagegen eine diffusive Entfernung des Schmutzes (Grenzfläche Schmutz/Reinigungsmittel), bis letztendlich die gesamte Oberfläche gesäubert ist.

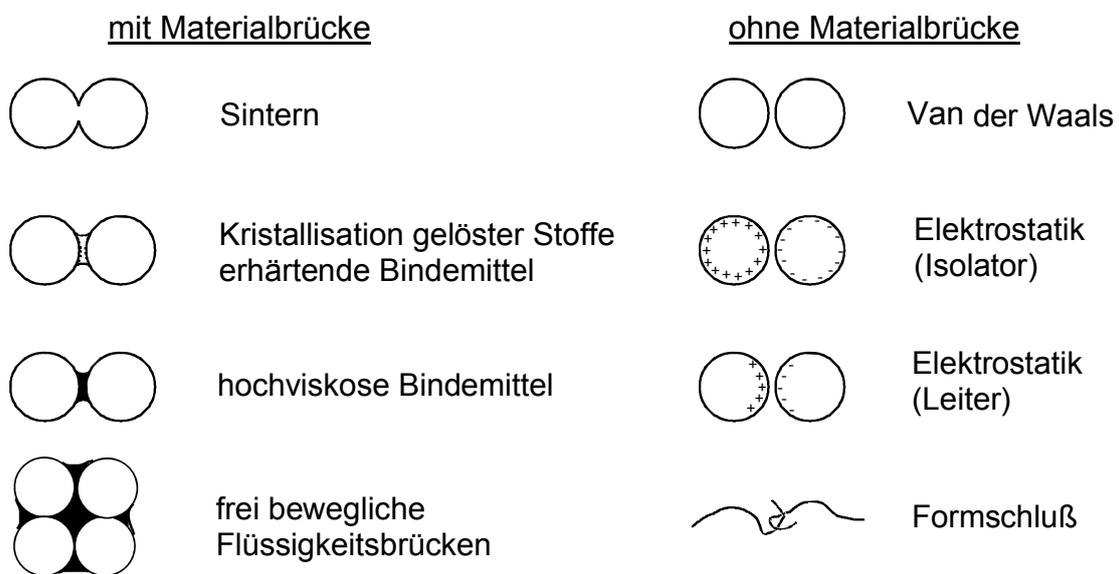
Während im Rahmen dieser Arbeit die verwendeten Einzelpartikel ausschließlich durch Strömungskräfte von den Testoberflächen abgelöst wurden, wurde bei der Verwendung von Schmutzfilmen als Kontamination diese Unterscheidung in diffusive (auflösende) und haftkraftüberwindende (ablösende) Reinigung getroffen.

### 3.2 Haftkräfte zwischen Verschmutzung und Wand

Jede Kontamination, egal ob es sich um Einzelpartikel oder ganze Schmutzfilme handelt, wird durch ihre resultierende Haftkraft an der Oberfläche mehr oder weniger stark fixiert. Diese resultierende Haftkraft setzt sich nicht nur aus attraktiven Kräften zusammen, sondern es können auch repulsive Kräfte einen bemerkenswerten Anteil daran haben. Die Theorien, wie sich diese Haftkraft zusammensetzt, die während der

Strömungsablösung durch die hydrodynamische Trennkraft überwunden werden muss, werden im Folgenden erläutert.

Haftkräfte spielen in vielen Unit Operations der Lebensmittelindustrie eine wichtige Rolle, wie z.B. Reinigung, Agglomeration, Zerkleinerung, Abscheidung oder Feststofftransport. In gasförmiger Umgebung können die Haftkräfte zwischen Feststoffen nach SCHUBERT [111] in Bindemechanismen mit und ohne Materialbrücke eingeteilt werden. Die selben Kräfte nennt KOGLIN [66] in einer anderen Einteilung für den Kontakt von Festkörpern, die in Flüssigkeiten suspendiert sind. Zu den Bindemechanismen mit Materialbrücke zählen Sintervorgänge, das Erhärten von kristallisch gelösten Stoffen im Kontaktbereich, Flüssigkeitsbrücken und Kapillarflüssigkeit. Ohne Materialbrücke kommen van der Waals, elektrostatische Kräfte und formschlüssige Verbindungen (v.a. bei faserförmigen Stoffen) in Betracht. Die Zusammenstellung dieser Einteilung ist Abbildung 3.3 zu entnehmen [111].



**Abbildung 3.3: Bindemechanismen zwischen Stoffen mit und ohne Materialbrücke in gasförmiger Umgebung [111]**

In wässriger Umgebung fallen Kräfte durch wässrige Flüssigkeitsbrücken weg, wie z.B. die in gasförmiger Umgebung sehr starken Kapillarkräfte durch adsorbiertes Wasser. Ist nur eine stationäre Phase vorhanden, so kann sich aufgrund der vollen Benetzung einer Partikel im immernierten System keine Kapillare und somit auch kein kapillarer Unterdruck (Laplace Druck) ausbilden, welcher für die attraktive Kraft verantwortlich ist.

Im Rahmen der Untersuchungen werden auch keine Haftkräfte durch Sintern, Kristallisation oder Formschluss erzeugt. Es wird daher im Laufe der

Untersuchungen speziell auf die Van der Waals Kräfte und die elektrostatischen Kräfte eingegangen.

### 3.2.1 Ursache und Grundlagen der Van der Waals Kraft

Wenn Atome bzw. Moleküle aufeinander wirken, sind immer Van der Waals Haftkräfte vorhanden [76].

Die Van der Waals Kräfte entstehen nach quantenmechanischer Betrachtung durch statistische Schwankungen von Ladungsverteilungen. Nach der Heisenbergschen Unschärferelation ist es nicht möglich, ein Elektron eines Atoms zu einem bestimmten Zeitpunkt genau zu lokalisieren. Ein benachbartes Atom steht demnach ebenso einer fluktuierenden Ladung gegenüber, die einem fluktuierenden Dipol entspricht. Durch diesen fluktuierenden Dipol vermag sich ein Atom mit anderen Atomen oder Molekülen zu koppeln. Dies bedeutet eine Induzierung eines weiteren Dipols in dem Partneratom, dessen Polarisierung der seines Erzeugers entgegengesetzt ist. Die Folge ist eine anziehende Wechselwirkung der beiden Partner [54]. Bereits durch diese Erklärung lässt sich gut erkennen, dass die Stärke der Wechselwirkung u.a. davon abhängt, wie leicht sich der Partner polarisieren lässt und wie sehr die Welle durch das Medium geschwächt wird, in welchem sie sich ausbreitet.

Soll dieser Ansatz auf zwei makroskopische Körper übertragen werden, so gibt es prinzipiell zwei Methoden, die Van der Waals Kraft zwischen diesen zu berechnen: die makroskopische Theorie nach Lifshitz und die mikroskopische Theorie nach Hamaker [66] [111] [121].

#### 3.2.1.1 Die mikroskopische Theorie nach Hamaker

Nach der mikroskopischen Theorie von Hamaker werden die Wechselwirkungen der einzelnen Atome und Moleküle betrachtet und über alle in den Haftpartnern enthaltenen Teilchen summiert. Diese Wechselwirkungen setzen sich aus London- bzw. Dispersionswechselwirkungen, Keesom- bzw. Orientierungswechselwirkungen und Debeye- bzw. Induktionswechselwirkungen zusammen.

Dabei wird angenommen, dass die Wechselwirkungen additiv sind und sich gegenseitig nicht beeinflussen, was in der Berechnung einer summierten Interaktionskonstante  $C_{\text{vdW}}$  zum Ausdruck kommt [13] [54].

$$C_{\text{vdW}} = C_{\text{Disperion}} + C_{\text{Orientierung}} + C_{\text{Induktion}} \quad \text{Gl. 3.1}$$

Die Intensität der Wechselwirkung zweier Körper hängt dabei von deren Hamaker-Konstanten  $H$  ab. Die Hamaker Konstante  $H_{11}$  zwischen zwei gleichartigen Stoffen 1

im Vakuum, wird durch molekulare Eigenschaften der beteiligten Haftpartner, wie der Anzahl ihrer Atome bzw. Moleküle pro Volumeneinheit  $q_1$  und deren frequenzabhängiger Polarisierbarkeit, die durch die Interaktionskonstante  $C_{vdW}$  beschrieben wird, wie folgt bestimmt.

$$H_{11} = \pi^2 \cdot C_{vdW} \cdot q_1 \cdot q_1 \quad \text{Gl. 3.2}$$

Die frequenzabhängige Polarisierbarkeit der meisten Atome ist jedoch nicht bekannt. Deshalb kann die Hamaker Konstante danach nur schwer bestimmt werden. Aufgrund der verschiedenen Berechnungs- und Meßmethoden sind die bis um den Faktor 100 unterschiedlichen Werte in der Literatur zu erklären [121]. Grob lassen sich für Reinstoffe folgende Werte nach LAGALY [73] zuordnen:

H = Hamaker Konstante: =	(20 - 45) $10^{-20}$ J	für Metalle und Kohlenstoffe
	(5 - 20) $10^{-20}$ J	für Oxide und Silicate
	(5 - 15) $10^{-20}$ J	für Salze
	(3 - 8) $10^{-20}$ J	für Polymere
	(4 - 7) $10^{-20}$ J	für Lösungsmittel

Eine relativ einfache Methode ist die Bestimmung der Hamaker Konstante über die Oberflächenenergie des Stoffes.

Die Oberflächenenergie  $\gamma_s$  ist die Energie, welche notwendig ist, um die Oberfläche eines Stoffes um eine Flächeneinheit zu vergrößern. Die Energie pro Fläche (Kohäsionsarbeit), um zwei miteinander verbundene Oberflächen gleichen Materials 1 im Vakuum vom Kontakt bis ins Unendliche zu trennen, ist direkt proportional zur Oberflächenenergie des Materials [87]:

$$W_{11} = 2 \cdot \gamma_1 \quad \text{Gl. 3.3}$$

Werden zwei Körper unterschiedlicher Materialien voneinander getrennt, werden dabei zwei neue Oberflächen gebildet, die aus zwei verschiedenen Materialien bestehen. Die Adäsionsarbeit  $W_{12}$  muss dabei die Oberflächenenergien  $\gamma_1$  und  $\gamma_2$  kompensieren und wird dabei durch die Grenzflächenenergie  $\gamma_{12}$  verringert:

$$W_{12} = \gamma_1 + \gamma_2 - \gamma_{12} \quad \text{Gl. 3.4}$$

Zur Bestimmung der Interaktionsenergie zweier Oberflächen werden die Wechselwirkungen der einzelnen Teilchen betrachtet und über alle in den Oberflächen enthaltenen Teilchen summiert. Um die Wechselwirkungen realer, in endlichem Abstand  $a$  voneinander entfernter Oberflächen berechnen zu können, wird die Interaktionsenergie pro Flächeneinheit in Abhängigkeit des Abstandes als  $W(a)$  wie folgt bestimmt.

$$W(a) = \frac{\pi \cdot C_{vdw} \cdot q_1 \cdot q_1}{12 \cdot a^2} \quad \text{Gl. 3.5}$$

Hierbei ist  $a$  der Abstand zwischen den Oberflächen. Im Falle der Haftung, also des Berührens von Partikel und Oberfläche, würde sich der Abstand  $a$  dem Wert Null annähern und die berechenbare Interaktionsenergie würde gegen den Wert unendlich laufen. Die Körper wären theoretisch nicht mehr von einander zu trennen. Dies widerspricht den Beobachtungen. Deshalb wurde ein Grenzwert für  $a$  als Anpassungsparameter eingeführt. Dieser liegt im Bereich von einer Atomgröße. In dieser Arbeit wird mit einem Anpassungsparameter  $a_0$  von 4 Å bzw. 0,4 nm gerechnet [83].

Unter der Annahme, dass Atome und Moleküle von Feststoffen in dichtester Kugelpackung vorliegen, kann für den Abstand  $\delta_0$ , der zwischen den Teilchen besteht, mit einem Wert von  $\delta_0 \approx a_0 / 2,5$  gerechnet werden, so dass nach [54] näherungsweise der Zusammenhang von Hamaker Konstante und Oberflächenenergie  $\gamma_s$  aufgestellt werden kann. Für zwei Oberflächen im Kontakt ( $a = \delta_0$ ), ergibt sich:

$$W_s = \frac{H}{12 \cdot \pi \cdot \delta_0^2} = 2 \cdot \gamma_s \quad \text{Gl. 3.6}$$

$$H \approx \gamma_s \cdot 24 \cdot \pi \cdot (0,165 \text{ nm})^2 \approx \gamma_s \cdot 2,053 \cdot 10^{-18} \cdot \text{m}^2 \quad \text{Gl. 3.7}$$

Wird die Interaktion zweier Körper unterschiedlichen Materials 1 und 2 im Vakuum betrachtet, berechnet sich die Hamaker Konstante  $H_{12}$  der Kombination aus den Hamaker Konstanten der einzelnen Materialien  $H_{11}$  und  $H_{22}$ .

$$H_{12} = \sqrt{H_{11} \cdot H_{22}} \quad \text{Gl. 3.8}$$

Ist das HaftsysteM aus zwei Feststoffen 1 von einem Fluid 3 umgeben, berechnet sich die Hamaker Konstante  $H_{131}$  mit folgender Gleichung:

$$H_{131} = H_{11} + H_{33} - 2 \cdot H_{13} = (\sqrt{H_{11}} - \sqrt{H_{33}})^2 \quad \text{Gl. 3.9}$$

Für wässrige Dispersionen lassen sich folgende Werte nach LAGALY [73] zuordnen:

$H_{131}$ = Hamaker Konstante: =	(15 - 30) $10^{-20}$ J	für Metalle
	(1 - 5) $10^{-20}$ J	für Oxide und Silicate
	(0,3 - 5) $10^{-20}$ J	für Salze
	(0,3 - 1.4) $10^{-20}$ J	für Polymere

Sind zwei Feststoffe 1 und 2 in Kontakt und von einem Fluid 3 umgeben, gilt für die Hamaker Konstante  $H_{132}$ :

$$\mathbf{H}_{132} = \mathbf{H}_{12} + \mathbf{H}_{33} - \mathbf{H}_{13} - \mathbf{H}_{23} = (\sqrt{\mathbf{H}_{11}} - \sqrt{\mathbf{H}_{33}}) \cdot (\sqrt{\mathbf{H}_{22}} - \sqrt{\mathbf{H}_{33}}) \quad \text{Gl. 3.10}$$

Im Vakuum oder zwischen zwei gleichen Haftpartnern ist die Van der Waals Kraft prinzipiell eine Anziehungskraft.  $\mathbf{H}_{132}$  kann aber auch negativ werden, wenn  $\mathbf{H}_{11} < \mathbf{H}_{33} < \mathbf{H}_{22}$  oder  $\mathbf{H}_{11} > \mathbf{H}_{33} > \mathbf{H}_{22}$  ist und es wird in diesem Fall eine Abstoßung des Partikels von der Oberfläche bewirkt [83] [118].

Gegenüber der Van der Waals Kraft an Luft wird durch Suspendierung von Partikeln in Wasser die Haftkraft um etwa einen Faktor von 10 reduziert [53] [83] [109]. Dies ist beim täglichen Waschen der Kleidung in Wasser von Nutzen, da dadurch ein schnellerer und leichter Reinigungserfolg im Vergleich zur Reinigung in Luft zu erzielen ist [9].

### 3.2.1.2 Die makroskopische Theorie nach Lifshitz

Die mikroskopische Theorie nach Hamaker basiert auf der Annahme der Additivität der Wechselwirkungen der einzelnen Atome. Durch einfache paarweise Addition der Wechselwirkungen zwischen den Atomen wird die gegenseitige Wechselwirkung benachbarter Atome vernachlässigt. Die „effektive“ Polarisierbarkeit eines Atoms ändert sich jedoch, wenn es von einem anderen Atom umgeben wird.

Die makroskopische Theorie nach Lifshitz [72] berücksichtigt die atomare Struktur nicht. Hier werden die Kräfte zwischen den Körpern auf messbare Feststoffeigenschaften, wie z.B. die Dielektrizitätskonstante, zurückgeführt [83] [84] [121].

Die Berechnungen gehen von den optischen Eigenschaften der wechselwirkenden Körper aus. Bei der makroskopischen Theorie werden die van der Waals Kräfte aus dem imaginären Teil der komplexen frequenzabhängigen Dielektrizitätskonstante bestimmt.

Anstelle der Hamaker Konstanten  $H$  wird die Lifshitz Konstante  $\hbar \omega$  eingeführt [41] [83] [72]. Die Lifshitz Konstante  $\hbar \omega$  für ein System aus zwei Feststoffen 1 und 2, die von einem Fluid 3 umgeben sind, berechnet sich aus den Dielektrizitätskonstanten der beiden Haftpartner  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  und der Dielektrizitätskonstante des Fluides  $\varepsilon_3$  durch Integration über die imaginäre Frequenz  $i\xi$  nach [96] mit Gleichung 3.11.

$$\hbar \omega_{132} = \hbar \int_0^{\infty} \frac{\varepsilon_1(i\xi) - \varepsilon_3(i\xi)}{\varepsilon_1(i\xi) + \varepsilon_3(i\xi)} \cdot \frac{\varepsilon_2(i\xi) - \varepsilon_3(i\xi)}{\varepsilon_2(i\xi) + \varepsilon_3(i\xi)} \cdot \mathbf{d}(i\xi) \quad \text{Gl. 3.11}$$

Im Vakuum ist  $\varepsilon_3$  gleich 1, in Luft kann  $\varepsilon_3 \approx 1$  angenähert werden [96][123]. Die numerische Auswertung des van der Waals Integrals ist durch den weitgehend unbekanntem Verlauf der dielektrischen Materialeigenschaften nur schwer möglich. Die frequenzabhängigen Dielektrizitätskonstanten  $\varepsilon(i\xi)$  können für den Grenzfall

großer Abstände im Vergleich zur Wellenlänge durch die statischen Dielektrizitätskonstante ersetzt werden.

Den größten Anteil zur mittleren frequenzabhängigen Dielektrizitätskonstante  $\epsilon$  beinhaltet die Absorption von Ultraviolettlicht durch das Material. Gleichung 3.11 ist nach Untersuchungen unabhängig von der Geometrie der Haftpartner [53]. Es wurde gezeigt, dass die Kombination aus Haftpartnern zweier unterschiedlicher Materialien 1 und 2 bei einem akzeptablen Fehler von etwa 5 % über die Gleichung 3.12 in eine für beide Materialien gemeinsame Lifshitz Konstante  $\hbar\epsilon_{12}$  berechnet werden kann [70].

$$\hbar\epsilon_{12} = \sqrt{\hbar\epsilon_{11} \cdot \hbar\epsilon_{22}} \quad \text{Gl. 3.12}$$

Die Hamaker Konstante  $H$  steht zu der Lifshitz Konstante  $\hbar\epsilon$  in folgender Beziehung [70] [121]:

$$\hbar\epsilon = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot H \quad \text{Gl. 3.13}$$

### 3.2.2 Grundlagen der elektrostatischen Kräfte

Das Coulombsche Gesetz (1785) gibt die elektrostatische Kraft an, welche zwei Punktladungen aufeinander ausüben.

$$\mathbf{F} = \frac{\mathbf{Q}_1 \cdot \mathbf{Q}_2}{4 \cdot \pi \cdot \epsilon \cdot \epsilon_0 \cdot \mathbf{a}} \quad \text{Gl. 3.14}$$

Aufbauend auf diese grundlegende Beziehung gibt es Rechenansätze für unterschiedliche Kontaktfälle. Da im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich Versuche in flüssigem Medium durchgeführt wurden, werden speziell die elektrostatischen Kräfte behandelt, die im immmergierten System zwischen Körpern auftreten.

In Flüssigkeiten kommt es aufgrund der Ladung der Feststoffoberflächen zur Entwicklung eines Abstoßungspotentials zwischen zwei Körpern [85]. Die daraus resultierende Kraft wirkt den adhäsiven Kräften entgegen, was in Dispersionen häufig für deren Stabilisierung genutzt wird [66].

Die Ladung kann durch geladene chemische Gruppen aufgrund von Dissoziationen an der Oberfläche aber auch durch die Adsorption von Ionen aus dem Medium auf die Oberfläche des Körpers gelangen. Die Art der Ladung ist von den dissoziierbaren Gruppen an der Teilchenoberfläche abhängig und kann im Vorzeichen je nach pH-Wert wechseln [85]. In wässriger Phase, die in der Regel mit Sauerstoff gesättigt ist, kommt es zur Bildung von Hydroxylgruppen an Feststoffoberflächen, die einen Überschuss an negativen Ladungen aufweisen [88]. Dabei spielt der in Wasser

gelöst vorliegende Sauerstoff eine zentrale Rolle. Es kann folgende Reaktionsgleichung formuliert werden:

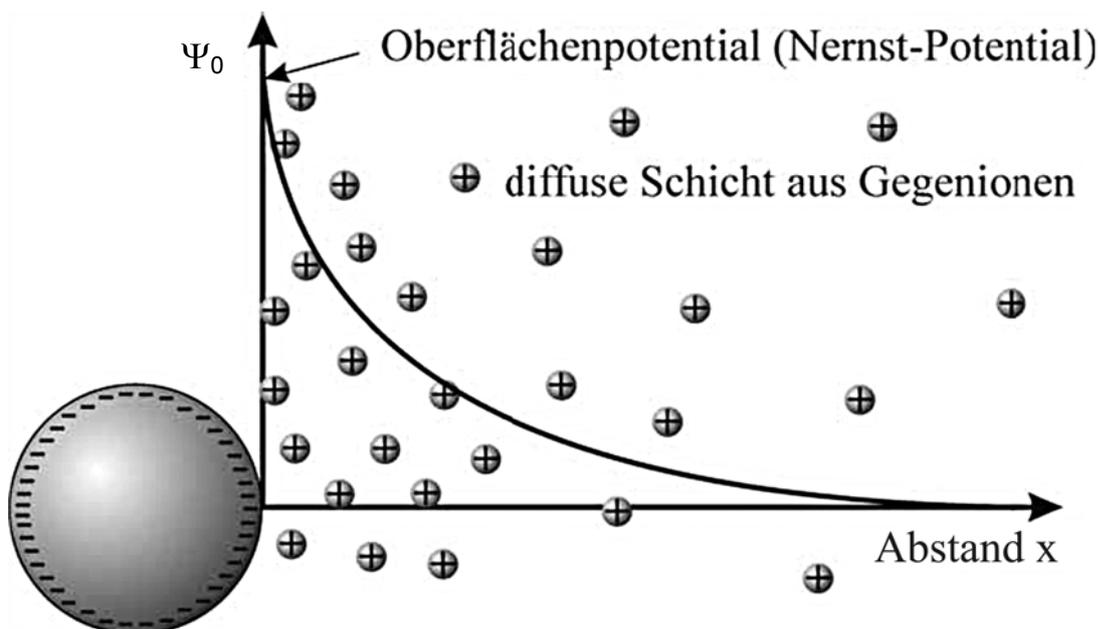


Die Nettoladung an der Grenzfläche ändert sich durch diese Reaktion nicht. Es ändert sich aber die Oxidationsstufe der an der Reaktion beteiligten Atome, wie am Beispiel einer Oxidationsreaktion von  $\text{Fe}^{2+}$  gezeigt wird.



Bei oxidischen Mineralen kann die Hydroxidbildung an der Grenzfläche auch ohne gelösten Sauerstoff ablaufen.

Je nach Stoffeigenschaften bewirkt die Oberflächenladung ein bestimmtes Oberflächenpotential. Dieses Potential wird in der Flüssigkeit mit steigendem Abstand von der Oberfläche exponentiell abgebaut (Abbildung 3.4).



**Abbildung 3.4: Abbau des Oberflächenpotentials innerhalb der diffusen Schicht durch Gegenionen am Beispiel einer Partikeloberfläche [1]**

Die Ermittlung des aus der Ionenverteilung resultierenden Oberflächenpotentials kann über die Poisson-Boltzmann Gleichung erfolgen [73]. Für niedrige Grenzflächenpotentiale resultiert daraus die sog. Debye-Hückel-Näherung [73]. Aus dieser Beziehung wird deutlich, dass das Oberflächenpotential theoretisch erst in unendlicher Entfernung vollkommen abgebaut ist.

$$\Psi(\mathbf{x}) = \Psi_0 \cdot \frac{r}{r+x} \cdot e^{-\kappa x}$$

Gl. 3.17

Direkt an der Oberfläche mit dem Oberflächen- oder Nernstpotential ( $\Psi_0$  oder  $\Psi_{Nst}$ ) wird in elektrolythaltigen Flüssigkeiten eine Monoschicht an beispielsweise negativen Ionen fest adsorbiert, was aufgrund der Ordnung einen linearen Anstieg des Potentials zur Folge hat. Dies kann auch auf negativ geladenen Oberflächen aufgrund der unterschiedlichen Hydratisierbarkeit der Ionen der Fall sein (Abbildung 3.5). An diese innere Helmholtzschicht  $\Psi_i$  wird eine weitere Monoschicht positiver Gegenionen in der äußeren Helmholtz-Schicht  $\Psi_a$  fest gebunden. Da die Kationen im Gegensatz zu den Anionen eine größere Hydrathülle besitzen, kann die negative Ladung durch den größeren Platzbedarf nicht vollständig kompensiert werden [115] [85]. Der Körper bleibt weiterhin nach außen geladen. Dieses Potential wird weiter durch eine Wolke frei beweglicher Ionen exponentiell abgebaut. Diese Wolke von Gegenionen, die als diffuse Schicht bezeichnet wird, umgibt das Teilchen und es erscheint nach außen neutral [126]. Der Aufbau der Schichten ist in Abbildung 3.5 für eine elektrolythaltige Flüssigkeit dargestellt.

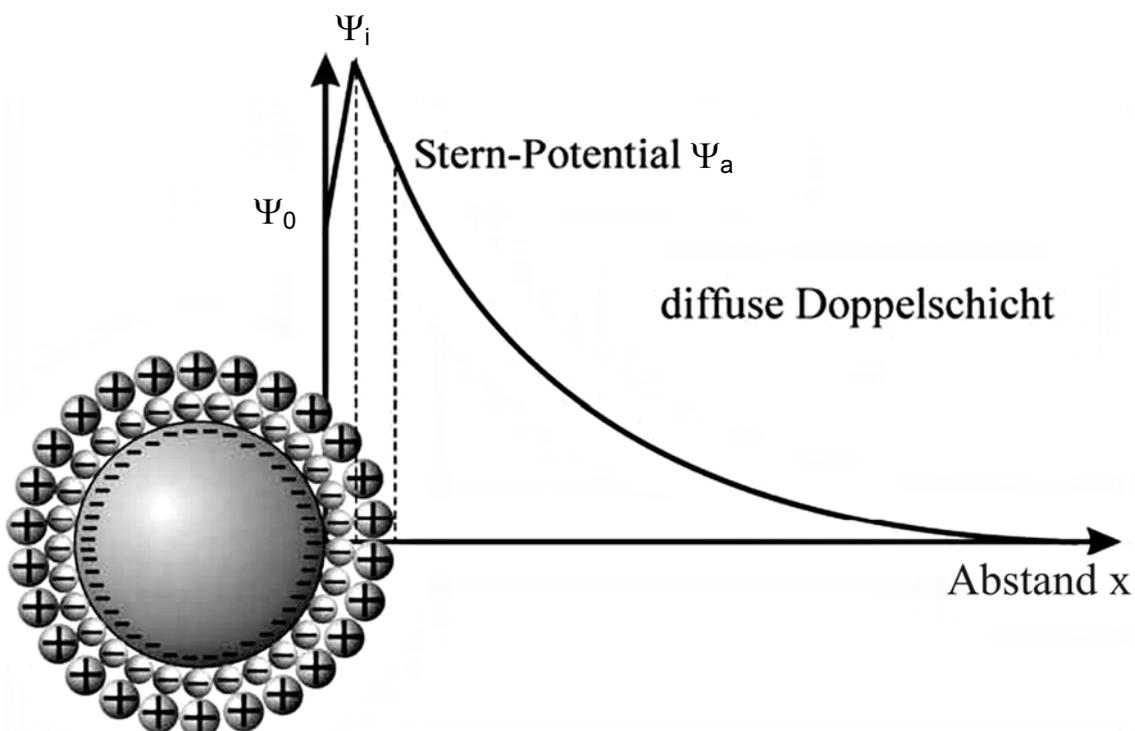


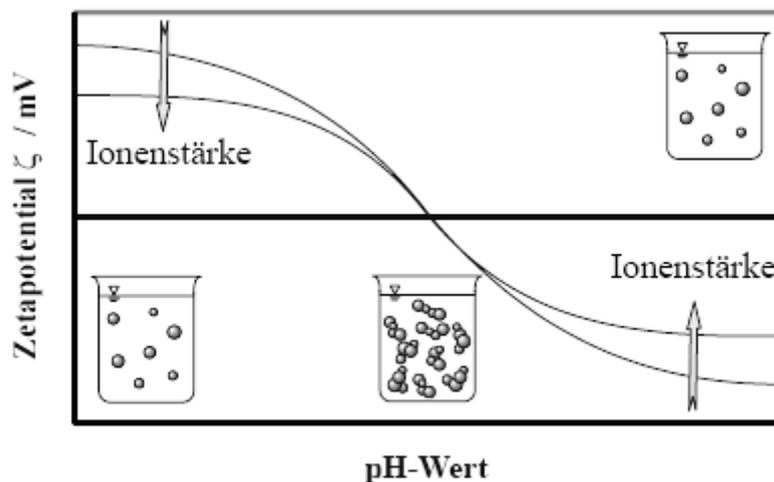
Abbildung 3.5: Schematischer Potentialverlauf einer Partikel im elektrolythaltigen Fluid [1]

Die diffuse Schicht aus nicht fixierten, beweglichen Ionen ist kein festes, starres Gebilde, da v.a. Brownsche Molekularbewegungen der Ionen eine feste Bindung durch elektrostatische Kräfte verhindern. Bei der Bewegung eines Teilchens in der Flüssigkeit (z.B. durch Diffusion) kommt es aufgrund von Reibungskräften zu einem

teilweise Abstreifen der Gegenionen an einer Scherebene. Das geladene Teilchen kann aufgrund der abgestreiften Gegenionen die negative Ladung nicht mehr kompensieren. Es ist nach außen hin nicht mehr neutral und eine auf die Umgebung wirksame Potentialdifferenz ist entstanden [77] [78] [85]. Dieses Potential wird als Zeta-Potential ( $\zeta$ -Potential) bezeichnet.

Kommen sich zwei Oberflächen in wässrigem Milieu näher, so überlappen sich ab einem bestimmten Abstand deren diffuse Schichten. Es bildet sich ein Abstoßungspotential, welches u.a. von dem Oberflächenpotential abhängt. Letzteres ist im wässrigen Medium jedoch nicht direkt messbar, weshalb ihm bei Messung in elektrolytarmen Medium das Zeta-Potential näherungsweise gleichgesetzt werden kann.

Wie das Oberflächenpotential auch hängt das Zeta-Potential von dem pH-Wert, aber auch von dem Elektrolytgehalt der Flüssigkeit ab [55]. Im sauren Bereich ist die Grenzflächenladung aufgrund des Überschusses an Protonen positiv und nimmt bei steigendem pH-Wert ab. Der Zustand, bei dem das Zeta-Potential den Wert Null annimmt, wird isoelektrischer Punkt (IEP) genannt. Es ist keine elektrostatische Wechselwirkung zwischen den Partikeln mehr wirksam.



**Abbildung 3.6:** Abhängigkeit des Zeta-Potentials von dem Elektrolytgehalt (Ionenstärke) und dem pH-Wert [1]

Mit dem gemessenen Zeta-Potential  $\zeta$  und der Zusammensetzung des Elektrolyten (Wertigkeit der Ionen  $z_i$ , Konzentration der Ionen  $n$ ) kann die Abstoßungsenergie  $E_{\text{Abstoßung}}$  zwischen zwei Oberflächen bestimmt werden (Energie pro Fläche, bei gleichem Zeta-Potential  $\zeta$  beider Haftpartner):

$$E_{\text{Abstoßung}} = 64 \cdot k \cdot T \cdot n \cdot \delta \cdot e^{-\frac{(a_0+a)}{\delta}} \cdot \left( \tanh\left(\frac{\mathbf{z}_i \cdot \mathbf{e} \cdot \zeta}{k \cdot T}\right) \right)^2 \quad \text{Gl. 3.18}$$

$$\delta = \sqrt{\frac{\varepsilon_0 \cdot \varepsilon \cdot k \cdot T}{2 \cdot e^2 \cdot n \cdot z_i^2}} \quad \text{Gl. 3.19}$$

$\varepsilon$  ist hierbei die Dielektrizitätskonstante,  $k$  die Boltzmann Konstante,  $T$  die absolute Temperatur,  $a$  der Partikelabstand,  $e$  die Elementarladung und  $n$  die Anzahl der Ionen pro Volumeneinheit im Medium.  $\delta$  ist die Debye-Länge, die den Abstand von der Oberfläche bezeichnet, in dem das Oberflächenpotential auf den Faktor  $e^{-1}$  ( $\approx 1 / 2,72$ ) seines ursprünglichen Wertes abgefallen ist.

Neben der Abstoßung aufgrund der Überlappung der diffusen Schichten kann es im Kontaktfall eine zusätzliche anziehende elektrostatische Kraft entstehen. Kommt es zu einem Kontakt unterschiedlicher Stoffe, so besitzen die Materialien der beiden Kontaktpartner unterschiedliche Elektronenaustrittsarbeiten. Die Elektronenaustrittsarbeit bezeichnet die Energie, welche benötigt wird, um ein Elektron aus dem Materialverbund heraus bis in unendliche Entfernung zu transportieren. Bei Berührung zweier Materialien gehen Elektronen vom Körper kleinerer Austrittsarbeit in den Körper höherer Austrittsarbeit über und die Austrittsarbeiten gleichen sich mit zunehmendem Elektronenübergang an. Da dem ersten Körper Elektronen entzogen werden und dem zweiten Körper zusätzliche Elektronen hinzugefügt werden, baut sich ein Kontaktpotential auf. Das Kontaktpotential wächst an, bis es der Differenz der Elektronenaustrittsarbeiten beider Materialien entspricht [111]. Da sich bei elektrischen Leitern die Ladungen im Kontaktbereich konzentrieren, ist die elektrostatische Wechselwirkung größer als bei Isolatoren. Für elektrische Leiter  $F_{\text{el, L}}$  berechnet sich die elektrostatische Kraft pro Fläche  $A$ , die sich aus dem Kontaktpotential  $U_K$  ergibt, nach:

$$\frac{F_{\text{el, L}}}{A} = \pi \cdot \varepsilon \cdot \varepsilon_0 \cdot U_K^2 \cdot \frac{1}{a_0^2} \quad \text{Gl. 3.20}$$

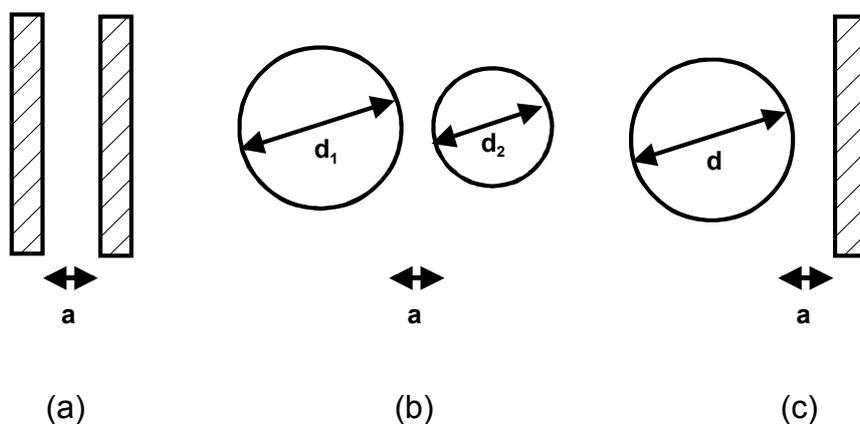
Das Kontaktpotential  $U_K$  nimmt häufig Werte zwischen 0,1 V und 0,7 V an [111]. Bei Isolatoren wird anstelle des Kontaktpotentials von Überschussladungen gesprochen, die als Flächenladungen  $\varphi$  vorliegen. Es werden maximale Flächenladungen von ca.  $100 \text{ e}/\mu\text{m}^2$  gemessen. Für vollkommene elektrische Isolatoren können die Anziehungskräfte für Modellkörper auf einfache Weise berechnet werden. Unter der Voraussetzung, dass die Ladungen stets gleich verteilt sind, gilt das Coulombsche Gesetz.

$$\frac{F_{\text{el, Iso}}}{A} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\varphi_1 \cdot \varphi_2}{\varepsilon \cdot \varepsilon_0} \quad \text{Gl. 3.21}$$

RUMPF [103] hat gezeigt, dass diese anziehende elektrostatische Kraft, hervorgerufen durch das ausgebildete Kontaktpotential (Leiter) oder die Flächenladung (Isolator), um mindestens eine Größenordnung kleiner ist als die Van der Waals Kraft im Kontaktfall. Sie werden daher im weiteren Verlauf der Arbeit vernachlässigt.

### 3.2.3 Differenzierung der Kräfte für unterschiedliche Haftsysteeme

Grundsätzlich können die Theorien der behandelten Kräfte auf verschiedene Haftsysteeme angewendet werden (Abbildung 3.7): das Platte-Platte-Modell (a), das Kugel-Kugel-Modell (b) und das Kugel-Platte-Modell (c). Während der zweite Fall (b) hauptsächlich bei Agglomerations- und Koagulationsprozessen eine zentrale Rolle spielen, beschreiben die übrigen Systeme die Haftung an einer Oberfläche (Platte), deren Kontaktpartner im Fall a) eine weitere Platte (z.B. Schmutzfilm) und im Fall b) eine Partikel (z.B. Mikroorganismus) ist. Da diese Modelle auf die Problemstellung der Reinigung übertragbar sind, wird im Folgenden ausschließlich auf Basis dieser beiden Vorstellungen gearbeitet.



**Abbildung 3.7: Vergleich der unterschiedlichen Haftkraftsysteme: (a) Platte-Platte, (b) Kugel-Kugel, (c) Kugel-Platte**

Um über die Haftkräfte realer, verformbarer Partikel und Oberflächen eine Aussage treffen zu können, werden zuerst die Prinzipien der Haftkräfte am idealen System erläutert. Dabei konzentriert sich diese Arbeit auf die nach ihrer Größenordnung relevantesten Kräfte, die anziehende Van der Waals und die elektrostatischen Kräfte.

Van der Waals Kraft

Die Größe der van der Waals Kraft  $F_{\text{vdW}}$  für die idealen Modellkombinationen Platte-Platte und Kugel-Platte ergibt sich im Kontaktfall nach folgenden Gleichungen:

**Platte-Platte:**

$$F_{\text{vdW}} = A \cdot \frac{H_{132}}{12 \cdot \pi \cdot a_0^3} \quad \text{Gl. 3.22}$$

**Kugel-Platte:**

$$F_{\text{vdW}} = \frac{H_{132} \cdot d}{12 \cdot a_0^2} \quad \text{Gl. 3.23}$$

wobei  $A$  die Kontaktfläche,  $H_{132}$  die vereinte Hamaker Konstante des Systems,  $a_0$  der Adhäsionsabstand und  $d$  der Kugeldurchmesser ist [10] [62] [121]. Unter Zuhilfenahme von Gleichung 3.13 können diese Gleichungen in die Form der Lifshitz-Van der Waals Beziehung umgerechnet werden.

Abstoßende elektrostatische Kraft

Wird der Abstand zwischen zwei gleich geladenen Oberflächen verringert wird, so resultiert eine repulsive Kraft zwischen den beiden Oberflächen. Diese ist aber nicht direkt auf die elektrostatische Abstoßung der beiden geladenen Oberflächen zurückzuführen, da die Kombination von geladener Oberfläche und angezogenen Ionen der entgegen gesetzten Ladung in der Summe elektrisch neutral sein muss. Vergleichbar mit dem osmotischen Druck entsteht die gesamte repulsive Kraft durch die elektrostatische Abstoßung der einzelnen Gegenionen untereinander, die sich zwischen den Oberflächen befinden. Die repulsive Kraft je Einheitsfläche (also der Druck)  $P$  zwischen Platten unterschiedlichen Zeta-Potentials mit dem Abstand  $a$  ist:

$$P_{\text{Abstoßung}} = 64 \cdot k \cdot T \cdot n \cdot e^{-\frac{a_0+a}{\delta}} \cdot \tanh\left(\frac{z_i \cdot e \cdot \zeta_1}{4 \cdot k \cdot T}\right) \cdot \tanh\left(\frac{z_i \cdot e \cdot \zeta_2}{4 \cdot k \cdot T}\right) \quad \text{Gl. 3.24}$$

Die Kraft  $F_{\text{Abstoßung}}$  zwischen zwei planaren Oberflächen kann aus der Gl. 3.24 durch Multiplikation mit der Kontaktfläche  $A$  bestimmt werden. Durch eine einfache Integration nach dem Abstand ( $a_0 + a$ ) wird die Wechselwirkungsenergie  $E_{\text{Abstoßung}}$  pro Flächeneinheit zwischen zwei Oberflächen erhalten. Die Kraft  $F_{\text{Abstoßung}}$  zwischen einer kugeligen Partikel und einer flachen Oberfläche ist nach [54] mit  $F_{\text{Abstoßung}} = \pi \cdot d/2 \cdot E_{\text{Abstoßung}}$  angegeben.

**Platte-Platte:**

$$F_{\text{Abstoßung}} = A \cdot 64 \cdot k \cdot T \cdot \rho_{\infty} \cdot e^{-\frac{a_0+a}{\delta}} \cdot \tanh\left(\frac{z_i \cdot e \cdot \zeta_1}{4 \cdot k \cdot T}\right) \cdot \tanh\left(\frac{z_i \cdot e \cdot \zeta_2}{4 \cdot k \cdot T}\right) \quad \text{Gl. 3.25}$$

**Kugel-Platte:**

$$F_{\text{Abstoßung}} = \pi \cdot d \cdot 32 \cdot k \cdot T \cdot \rho_{\infty} \cdot \delta \cdot e^{-\frac{(a_0+a)}{\delta}} \cdot \tanh\left(\frac{z_i \cdot e \cdot \zeta_1}{k \cdot T}\right) \cdot \tanh\left(\frac{z_i \cdot e \cdot \zeta_2}{k \cdot T}\right) \quad \text{Gl. 3.26}$$

Während im Modell Platte-Platte die Kontaktfläche A direkt eingesetzt werden kann, wird die Fläche für den Kontakt Kugel-Platte aus der Kontaktfläche zweier Kugeln mit den Radien  $R_1$  und  $R_2$  abgeleitet.

$$\frac{d}{2} = \frac{R_1 \cdot R_2}{(R_1 + R_2)} \quad \text{Gl. 3.27}$$

Ändert sich eine der Kontakt-Sphären zu einer flachen Oberfläche, so geht deren Radius  $R_2$  gegen unendlich. Es ergibt sich dadurch  $d/2 = R_1$

Elektrostatistische Anziehung

Da die Gleichungen 3.20 und 3.21 die Kraft pro Fläche beschreiben, können die Formeln direkt für das Platte-Platte Modell angewendet werden.

**Platte Platte (Leiter)**

$$F_{\text{el,L}} = A \cdot \pi \cdot \varepsilon \cdot \varepsilon_0 \cdot U_K^2 \cdot \frac{1}{a_0^2} \quad \text{Gl. 3.28}$$

**Platte Platte (Isolator)**

$$F_{\text{el,Iso}} = A \cdot \frac{1}{2} \cdot \frac{\varphi_1 \cdot \varphi_2}{\varepsilon \cdot \varepsilon_0} \quad \text{Gl. 3.29}$$

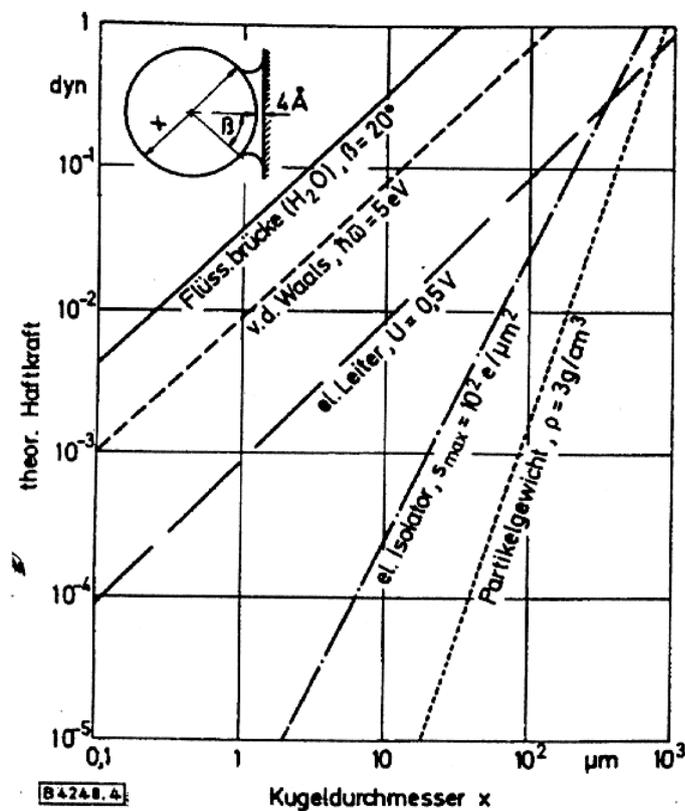
**Kugel-Platte (Leiter)**

$$F_{\text{el,L}} = \pi \cdot d \cdot \varepsilon \cdot \varepsilon_0 \cdot U_K^2 \cdot \frac{1}{2 \cdot a_0} \quad \text{Gl. 3.30}$$

**Kugel-Platte (Isolator)**

$$F_{\text{el,Iso}} = \frac{\pi \cdot d^2}{2} \cdot \frac{\varphi_1 \cdot \varphi_2}{\varepsilon \cdot \varepsilon_0} \quad \text{Gl. 3.31}$$

Aus der Literatur ist ersichtlich, dass beispielsweise bei einem Haftsyst $\ddot{u}$ m Kugel-Platte, das dem System Mikroorganismus bzw. Partikel – Testoberfl $\ddot{a}$ che entspricht, haupts $\ddot{a}$ chlich die Van der Waals Kraft (in gasf $\ddot{o}$ rmigem Medium ebenso die Kapillarkraft) Ber $\ddot{u}$ cksichtigung finden muss (Abbildung 3.8). Aus diesem Grund werden die anziehenden elektrostatischen Kr $\ddot{a}$ fte vernachl $\ddot{a}$ sstigt. Weitere Kr $\ddot{a}$ fte wie die Auftriebs- und Gewichtskraft sind in den Untersuchungen ebenso nicht von Bedeutung [54] [70] [83]. Besonders dort, wo feindisperse Feststoffe auftreten,  $\ddot{u}$ berwiegen die Haftkr $\ddot{a}$ fte die Schwerkkr $\ddot{a}$ fte um ein Vielfaches. Bei Partikeln mit Durchmessern von einigen  $\mu\text{m}$  k $\ddot{o}$ nnen die Haftkr $\ddot{a}$ fte das  $10^6$ -fache der Schwerkraft betragen (Abbildung 3.8) [111].



**Abbildung 3.8:** Abh $\ddot{a}$ ngigkeit der anziehenden Haftkr $\ddot{a}$ fte und der Gewichtskraft vom Partikeldurchmesser f $\ddot{u}$ r das System Kugel-Platte

Die relevantesten Kr $\ddot{a}$ fte f $\ddot{u}$ r die Haftung ohne Materialbr $\ddot{u}$ cke sind demnach die attraktive Van der Waals und die repulsive elektrostatische Kraft aufgrund der diffusen Schichten. Diese beiden Kr $\ddot{a}$ fte wurden zusammen mit der Bornschen Absto $\ddot{u}$ fung von Derjaguin und Landau sowie von Verwey und Overbeek zeitgleich jedoch unabh $\ddot{a}$ ngig voneinander kombiniert dargestellt und wird als DLVO-Theorie (Derjaguin, Landau, Verwey und Overbeek) bezeichnet [66]. Sie gibt die resultierende Energie zwischen K $\ddot{o}$ rpern in Abh $\ddot{a}$ ngigkeit des Abstands wieder. Da

die DLVO-Theorie v.a. während der Annäherung von Partikeln oder Körpern von Relevanz ist (z.B. für die Stabilisierung von Suspensionen) und weniger für den Kontakt selbst, wird an dieser Stelle nicht näher darauf eingegangen.

### **3.3 Die Abhängigkeit der Haftkraft von ihren Parametern**

Wie bereits erwähnt, ist es nicht Ziel dieser Arbeit, die theoretischen Haftkräfte mit den experimentellen Trennkräften zu vergleichen, um die Theorien zu validieren. Da in dieser Arbeit untersucht werden soll, welche Parameter die Reinigbarkeit einer Oberfläche beeinflussen, ist der Auswahl der Test-Parameter höchster Stellenwert zuzuordnen. Diese Auswahl wird anhand der beschriebenen Theorien und Gleichungen getroffen, auf deren Parameter in dem folgenden Kapitel speziell eingegangen wird.

#### **3.3.1 Der Einfluss des Oberflächenmaterials**

Edelstahl stellt das gängigste Oberflächenmaterial dar, das in dem Anlagenbau für die Lebensmittelindustrie eingesetzt wird. In der Pharma- und Chemieindustrie ist dagegen der Einsatz von anderen Werkstoffen wie Emaille- oder Glasoberflächen keine Seltenheit, v.a. wenn der Prozess spezielle Anforderungen stellt wie beispielsweise eine hohe Korrosionsbeständigkeit. Aus diesem Grund sind auch Erfahrungswerte über die Reinigung anderer Materialien vorhanden, die in den Versuchen zusätzlich auf definierte Weise untersucht werden sollen.

Neben den mechanisch stabilen Werkstoffen für die Innenoberflächen von Behältern, Reaktoren oder Rohrleitungen kommen auch Kunststoffe zum Einsatz, die als Dichtungen oder als verformbare Komponenten im Allgemeinen (wie z.B. bei Ventilen) wichtige prozessrelevante Vorteile liefern.

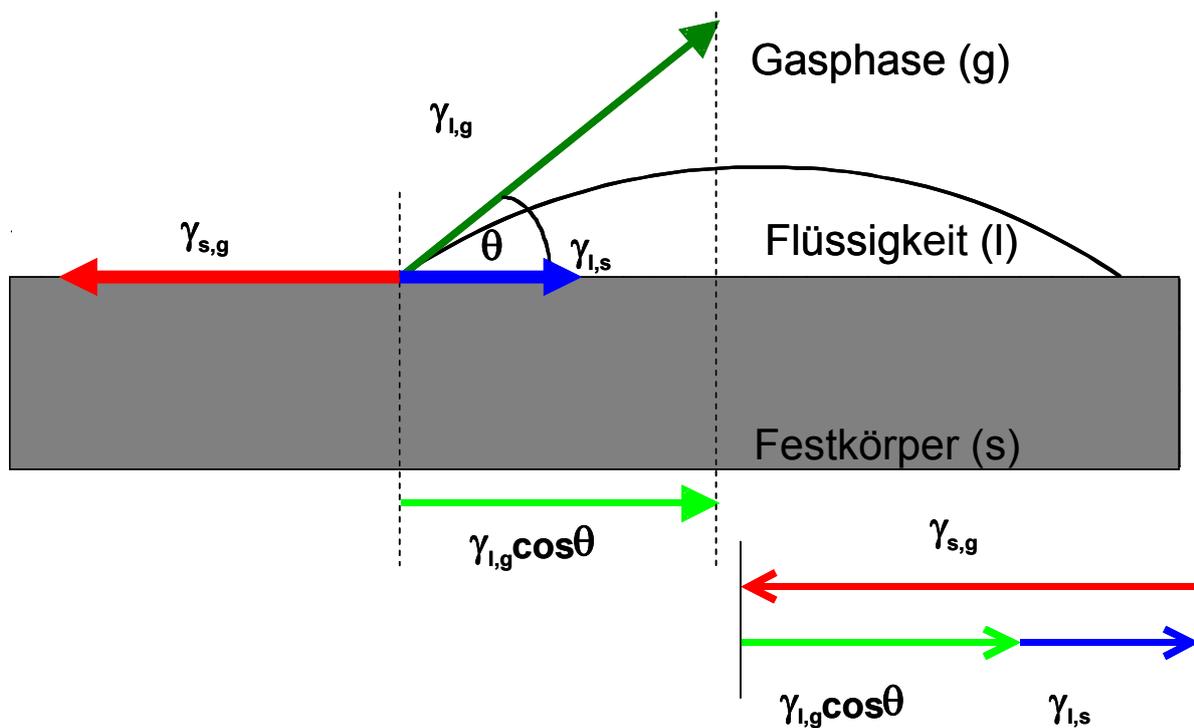
Das Oberflächenmaterial beeinflusst die Adhäsion dahingehend, da von diesem einerseits die Hamaker Konstante der Van der Waals Kraft und andererseits das Zeta-Potential der elektrostatischen Abstoßung abhängen.

##### **3.3.1.1 Auswirkungen durch die Oberflächenenergie**

Unter Verwendung der Oberflächenenergie  $\gamma$  kann die Hamaker Konstante eines Stoffes näherungsweise bestimmt werden (Gl. 3.7). Die Oberflächenenergie wird durch intermolekulare Kräfte zwischen zwei Oberflächen bestimmt. Demnach ist die Oberflächenenergie  $\gamma$  eine materialabhängige Größe.

Jedes System strebt danach, Oberflächen hoher Oberflächenenergien zu vermeiden oder zu minimieren, da der thermodynamisch stabile Zustand eines Systems derjenige mit der geringsten (freien) Energie ist. Daraus folgt, dass beispielsweise Materialien hoher Oberflächenenergie leicht durch Materialien geringer Oberflächenenergie bedeckt werden. Handelt es sich bei dem bedeckenden Medium um eine wässrige Flüssigkeit, so wird von einer hydrophilen Oberfläche gesprochen, falls das Fluid die Oberfläche stark benetzt. Dies ist demnach bei hochenergetischen Oberflächen der Fall.

Die direkte Messung der Oberflächenenergie eines Feststoffes ist nicht möglich. Als indirekte Methode hat sich für Oberflächen die Bestimmung der Oberflächenenergie aus Kontaktwinkelmessungen bewährt. Der Kontaktwinkel  $\theta$  ist der Winkel, der sich bei Benetzung zwischen der Flüssigkeit und der Oberfläche in einem dritten Medium (häufig Luft) einstellt (Abbildung 3.9). Die Indizes bezeichnen die Phasen zwischen denen die Grenzflächenspannung besteht: fest (s), flüssig (l) und gasförmig (g).



**Abbildung 3.9: Kontaktwinkel  $\theta$  einer Flüssigkeit auf einem Feststoff in gasförmigem Medium**

Eine möglichst exakte Messung des Kontaktwinkels stellt an die Oberflächen hohe Ansprüche, indem je nach Messmethode zwingend entsprechende Geometrien und Messbedingungen einzuhalten sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Oberflächenenergien an der Bundesanstalt für Materialforschung- und -prüfung (BAM), Berlin, durch zwei unterschiedliche Messapparaturen bestimmt: Die Kontaktwinkelmessung an einem liegenden Tropfen (Abbildung 3.9, tensile drop method) und an einer benetzten Platte (Wilhelmy plate method).

Aus dem Kontaktwinkel  $\theta$  kann die Oberflächenenergie  $\gamma$  über die Young-Gleichung berechnet werden, was in Abbildung 3.9 bereits grafisch über Vektoren dargestellt wurde.

$$\cos \theta = \frac{\gamma_{s,g} - \gamma_{l,s}}{\gamma_{l,g}} \quad \text{Gl. 3.32}$$

Da es sich bei diesen Parametern jeweils um Grenzflächenspannungen zwischen zwei Phasen handelt, muss die Beziehung auf die Oberflächenenergien (Feststoffe) und Oberflächenspannungen (Flüssigkeiten) der einzelnen Phasen angepasst werden. Hierfür gibt es verschiedene Herleitungen nach der „Equation of state“ Theorie. Nach NEUMANN [71] kann aus der Kontaktwinkelmessung über folgende Beziehung nach der Oberflächenenergie des Feststoffes  $\gamma_s$  aufgelöst werden, wobei für die Oberflächenenergie und –spannung die Werte mit der Einheit [ $\text{mJ}/\text{m}^2$ ] einzusetzen sind:

$$\cos \theta = \frac{\left(0,015 \frac{\text{m}^2}{\text{mJ}} \cdot \gamma_s - 2\right) \sqrt{\gamma_s \cdot \gamma_l + \gamma_l}}{\gamma_l \cdot \left(0,015 \frac{\text{m}^2}{\text{mJ}} \cdot \sqrt{\gamma_s \cdot \gamma_l} - 1\right)} \quad \text{Gl. 3.33}$$

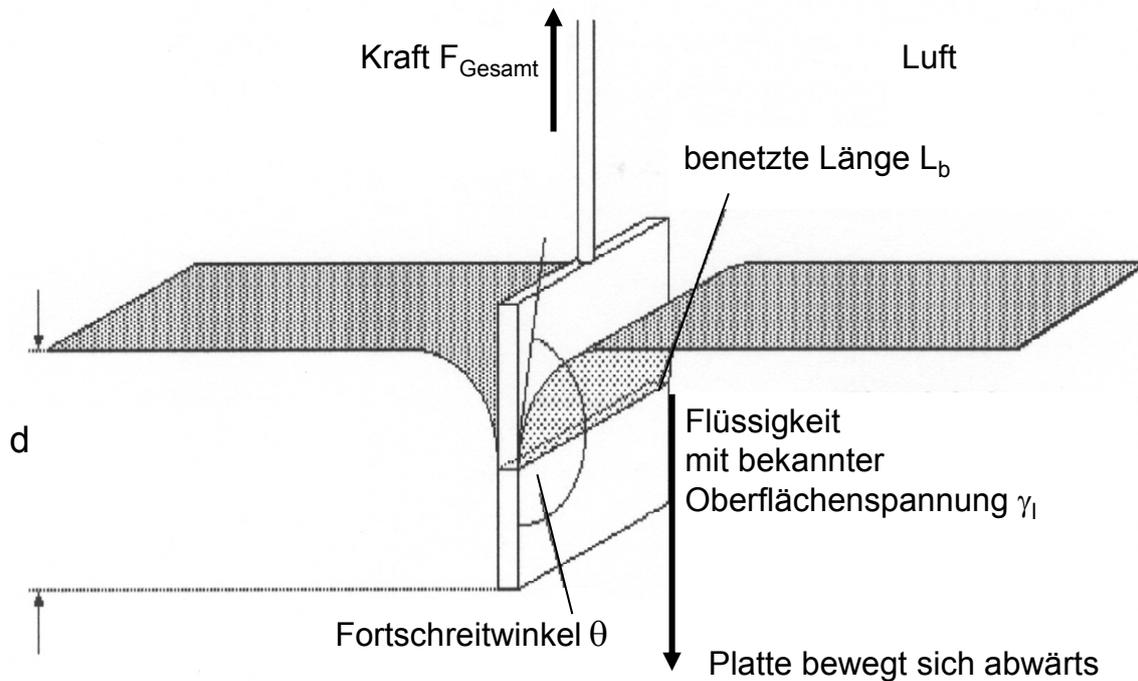
Bei der Methode des liegenden Tropfens wird mit Hilfe einer Kanüle ein Flüssigkeitstropfen auf die Festkörperoberfläche aufgebracht und mittels einer CCD-Kamera die sich ausbildenden Kontaktwinkel online vermessen. Die Bestimmung erfolgt durch dreifache Kontaktwinkelmessungen mit mindestens drei verschiedenen Flüssigkeiten, deren Oberflächenspannung bekannt sein muss.

Kritische Voraussetzung für diese Messung sind ebene, nicht wellige Oberflächen ohne Vorzugsrichtungen, wie sie z.B. durch das Schleifen entstehen.

Die Plattenmethode wurde ursprünglich zur Bestimmung der Oberflächenspannung von Flüssigkeiten gegen Luft benutzt. Bei der Kontaktwinkelmessung nach Wilhelmy wird dieses Verfahren umgekehrt und bei bekannter Oberflächenspannung der Flüssigkeit wird mit Hilfe einer Kraftmessung der Wert von  $\cos \theta$  ermittelt.

$$\cos \theta = \frac{|\bar{F}_{\text{Benetzung}}|}{L_b \cdot \gamma_l}$$

Wird ein Probenplättchen in eine Flüssigkeit eingetaucht (Abbildung 3.18) und wieder herausgezogen, ist eine dynamische Kontaktwinkelmessung sowohl des Fortschreite- als auch des Rückzugswinkels möglich.



**Abbildung 3.10: Integrierende Bestimmung der Oberflächenenergie: Kontaktwinkelmessung mit der Platten-Methode nach Wilhelmy**

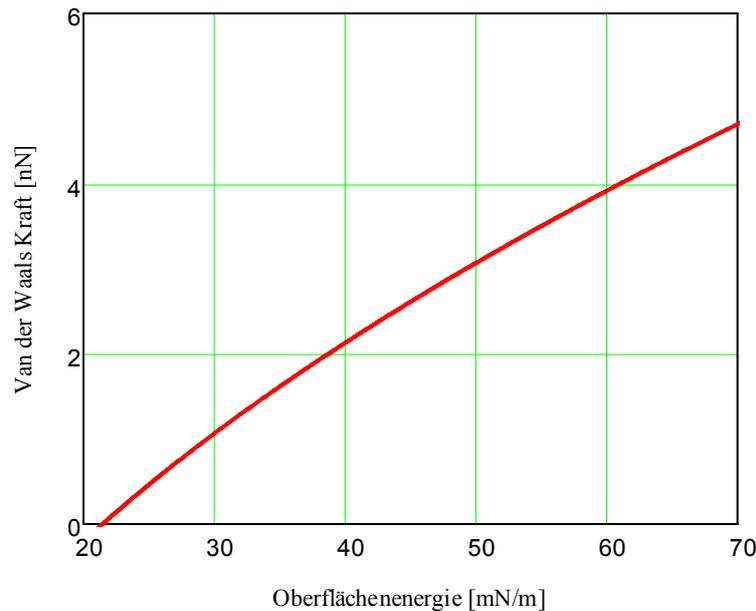
Die Kraft, die dabei in Abhängigkeit der Eintauchtiefe gemessen wird, setzt sich vektoriell aus der Auftriebs- und der Benetzungskraft zusammen.

$$\mathbf{F}_{\text{Gesamt}} = \mathbf{F}_{\text{Auftrieb}} + \mathbf{F}_{\text{Benetzung}} \quad \text{Gl. 3.34}$$

Daraus lässt sich der mittlere Kontaktwinkel, der sich entlang der benetzten Länge ergibt, berechnen. Durch den integrierenden Charakter dieser Messmethode muss die Geometrie der einzutauchenden Oberflächen genau bekannt sein. Die Werkstücke müssen nicht wie bei der Tropfenmethode flach sein, dafür müssen beide Seiten der „Platte“ gleichberechtigt in ihrer Beschaffenheit sein.

Aus der Oberflächenenergie kann näherungsweise die Hamaker Konstante des Werkstoffes errechnet werden (Gl. 3.6 bzw. Gl. 3.7). Da zur Berechnung der Van der Waals Kraft die Hamaker Konstanten aller beteiligten Medien benötigt werden (Gl 3.9) und beide Methoden der Oberflächenenergiemessung nur mit flächenartigen Werkstoffproben funktionieren, muss häufig für die Hamaker Konstanten der Einzelpartikel auf Literaturwerte zurückgegriffen werden. Diese können jedoch beachtlich variieren [121].

Der Einfluss der Oberflächenenergie auf die attraktive Van der Waals Kraft ist in Abbildung 3.11 dargestellt.



**Abbildung 3.11: Abhängigkeit der Van der Waals Kraft einer kugeligen Partikel von der Oberflächenenergie der Werkstoffoberfläche in Wasser**

Aus Abbildung 3.11 wird deutlich, dass die Van der Waals Kraft theoretisch auch den Wert Null erreichen kann. Dies ist der Fall, wenn die Oberflächenenergie des Werkstoffes gleich der Oberflächenspannung des umgebenden Fluids ist.

Da in der Literatur die Hamaker Konstante von Wasser mit  $4 \cdot 10^{-20}$  J angegeben wird, ist die Nullstelle in Abbildung 3.11 bereits von niederenergetischen Oberflächen bei einem Wert von ca. 21,4 mN/m erreicht. Dies veranschaulicht die Diskrepanz der Literaturwerte, da der Wert der Oberflächenspannung für Wasser bei 20 °C mit ungefähr 70 mN/m angegeben wird.

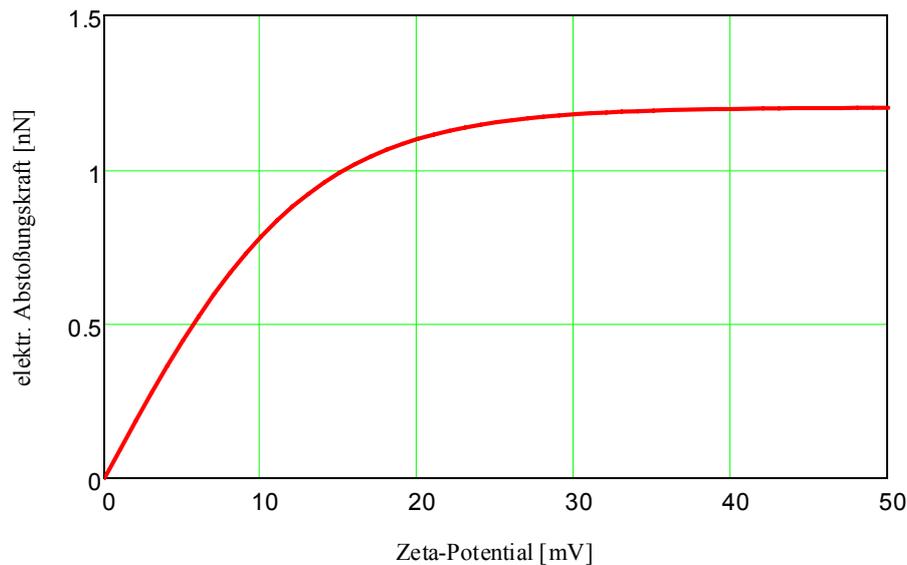
Da im Rahmen dieser Arbeit der Einfluss der Oberflächenenergie der Werkstoffoberfläche experimentell untersucht werden soll und keine Absolutwerte der resultierenden Haftkräfte verglichen werden, ist die Kenntnis der genauen Oberflächenenergien der anderen Partner nicht zwingend erforderlich.

### 3.3.1.2 Einflüsse durch das Zetapotential einer Oberfläche

Das Material einer Oberfläche ist ausschlaggebend für deren Oberflächenpotential und somit für deren Zeta-Potential, welches über Gl. 3.25 und Gl. 3.26 direkt in die Berechnung der elektrostatischen Abstoßung einfließt.

Nach dem Stand der Technik beschränken sich Messungen des Zeta-Potentials auf Oberflächen partikulärer Systeme. Das Zeta-Potential wird in einem oszillierenden elektrischen Feld ermittelt, in welchem die geladenen Partikel eine Beschleunigung in Richtung der entgegengesetzt geladenen Elektrode erfahren. Dadurch erhöht sich

die Partikelgeschwindigkeit, die nach Stokes proportional der Reibungskraft ist. Mit zunehmender Reibungskraft werden immer mehr Ladungen der diffusen Schicht abgestreift und es kommt zur Ausbildung einer Scherfläche. An dieser Scherfläche lässt sich das Zeta-Potential (=Potentialdifferenz) bestimmen. Der Einfluss des Zeta-Potentials der Werkstoffoberfläche auf die elektrostatische Abstossungskraft folgt dabei dem Verlauf des hyperbolischen Tangens (Abbildung 3.12, siehe Gl. 3.25 und Gl. 3.26).



**Abbildung 3.12: Abhängigkeit der elektrostatischen Abstossung einer haftenden Partikel ( $d = 1 \mu\text{m}$ ) von dem Zeta-Potential der Werkstoffoberfläche**

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Auswirkung der Werkstoffoberfläche untersucht. Diese liegt nicht als Pulver oder anderes partikuläres System vor und eine Zerkleinerung könnte durch tribologische Aufladung zu falschen Werten der Zeta-Potentiale führen. Da die Messung des Zeta-Potentials einer planaren Oberfläche eines elektrischen Leiters wie Edelstahl in Wasser erst seit kurzem angeboten wird (Fa. Anton Paar, Graz), konnte dieser Parameter nur durch Verwendung des gleichen Materials innerhalb einer Testreihe konstant gehalten werden. Bei einem Vergleich der Reinigbarkeit verschiedener Materialien kann die Aufteilung der Ursachen möglicher Unterschiede nicht einwandfrei nach Van der Waals Kraft und elektrostatischer Kraft vorgenommen werden. Die Auswirkung des Zeta-Potentials konnte daher in dieser Arbeit nicht untersucht werden.

### 3.3.2 Auswirkungen auf die Haftung durch das Reinigungsmedium

Im Rahmen dieser Arbeit soll das Reinigungsmedium konstant gehalten werden. Aus diesem Grund wird auf die Auswirkungen der Zusammensetzung bzw. einer Variation des Reinigungsmittels nur kurz eingegangen.

Eine Änderung des Reinigungsmittels erfolgt hauptsächlich durch eine Änderung des pH-Wertes, der Ionenkonzentration, der Temperatur und/oder durch die Beigabe von grenzflächenaktiven Substanzen (Tensiden). Die Auswirkungen dieser Parameter auf die intermolekularen Kräfte finden hauptsächlich in der Stabilisierung von Dispersionen praktische Anwendung. Der Einfluss des Reinigungsmittels wird im Folgenden in die jeweiligen Verschmutzungsfälle unterschieden.

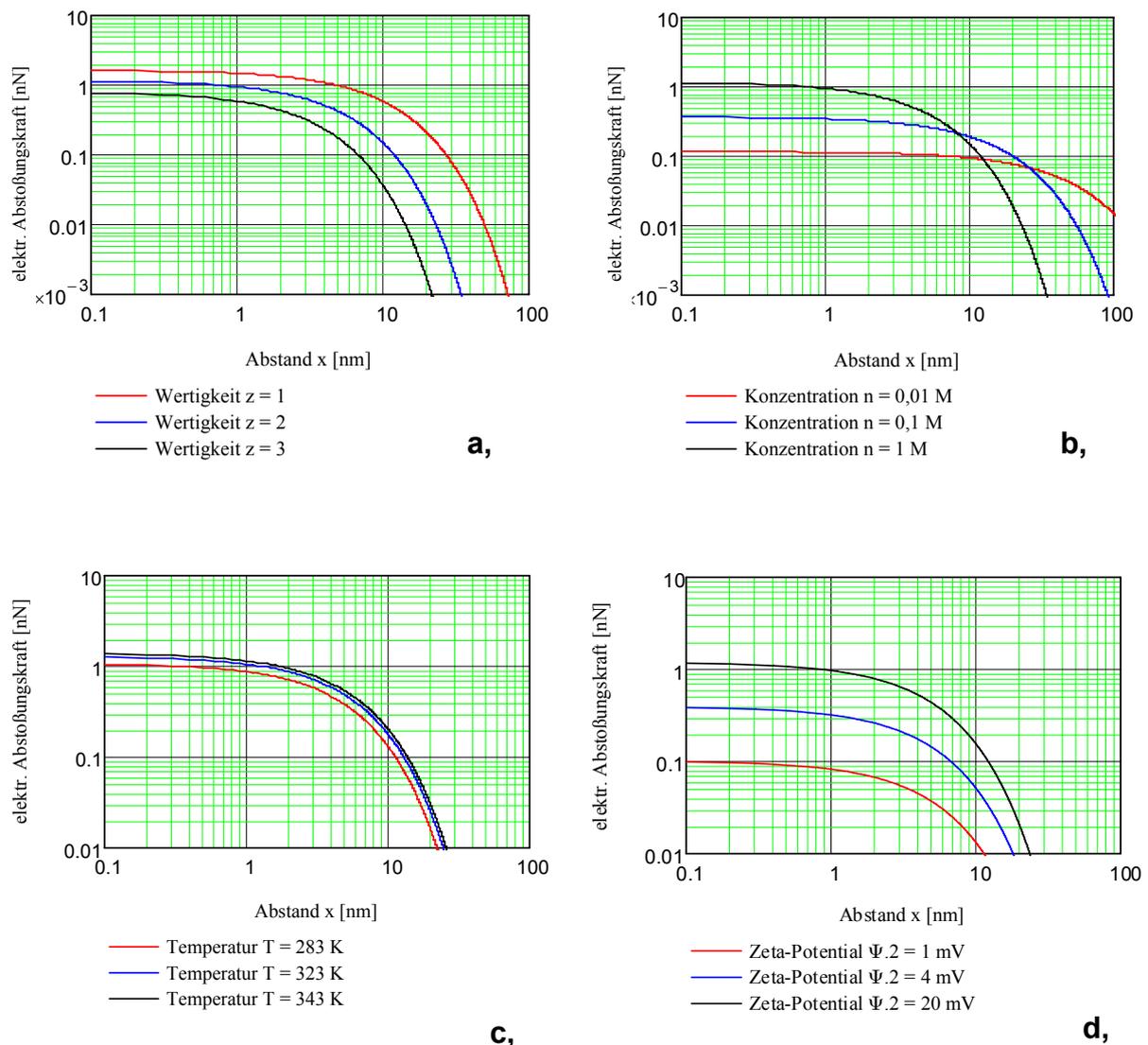
Im Falle der diffusiven Reinigung bewirkt das Reinigungsmedium, dass der Schmutz überhaupt chemisch gelöst wird, bevor er diffusiv in die Hauptströmung übergeht und somit abtransportiert wird (Kap. 3.6). Daher müssen die Effekte, die das chemische Lösungsvermögen beeinflussen von denen unterschieden werden, welche sich auf den diffusionsgesteuerten Abtransport auswirken. Während der Auflösungsprozess der Verunreinigung von all den genannten Parametern abhängt, ist für die Diffusionskonstante des gelösten Stoffes die Temperatur entscheidend (Kap. 3.6). Je besser das Reinigungsmittel dabei die Verunreinigung auflöst, desto besser kann der diffusive Teil der Reinigung erfolgen. In der Praxis sollte daher das Reinigungsmedium stets an die Verschmutzungsmatrix angepasst werden, um diese optimal zu quellen und aufzulösen.

Im Fall der Reinigung des kohäsiven Schmutzfilms und der Einzelpartikelablösung werden die Haftkräfte durch die Strömungskräfte überwunden. Das Reinigungsmedium beeinflusst die Haftkräfte, da sowohl die anziehende Van der Waals Kraft als auch die repulsive elektrostatische Kraft von ihm abhängen.

Von großer Bedeutung ist eine Änderung des Reinigungsmittels für die elektrostatische Abstoßung. Wie in Kap 3.2.2 beschrieben, ist die elektrostatische Abstoßung von dem Vorzeichen und dem absoluten Wert der Oberflächenladung abhängig. Die Oberflächenladung und das daraus entstehende Oberflächenpotential wird von dem pH-Wert des umgebenden Mediums bestimmt [85]. Auch durch grenzflächenaktive Stoffe kann die Oberflächenladung geändert werden und ein unterschiedliches Abstoßungspotential erzeugt werden [66]. Als Maß dafür dient das in elektrolytfreiem Wasser gemessene Zeta-Potential.

Da die elektrostatische Abstoßung dem osmotischen Druck der überlappenden diffusen Schichten entspricht, hängt die resultierende Kraft auch von deren Dicke ab. Je ausgedehnter die diffusen Schichten der beiden Kontaktpartner sind, desto größer ist der Bereich, in welchem sie sich überlappen. Dies hat auch eine größere Abstoßungskraft der Partner zur Folge. In Abbildung 3.13 ist die Abhängigkeit der

elektrostatischen Abstoßung von den Parametern der Reinigungslösung und von dem Abstand dargestellt. Die Abstandsabhängigkeit ist für die Partikelanlagerung oder die Stabilität von Dispersionen eine sehr relevante Größe. Wird der Abstand größer als die Dicke der diffusen Schichten, so fällt die elektrostatische Kraft stark ab.



**Abbildung 3.13:** Einfluss der Wertigkeit (a), der Ionenkonzentration (b), der Temperatur (c) und des Zeta-Potentials (d) auf die elektrostatische Abstoßung

Für geringe Abstände (Partikelkontakt bei  $x \approx a_0 = 0,4$  nm) ist aus Abbildung 3.13 ersichtlich, dass eine geringe Ionenkonzentration und ein geringeres Zeta-Potential je eine niedrigere elektrostatische Kraft erzeugen. Der Einfluss der Temperatur auf die elektrostatische Abstoßung ist nur gering, da die Änderung der absoluten

Temperatur nur in einem, relativ gesehen, kleinen Bereich möglich ist (theoretisch 373 K – 473 K).

Auf die Van der Waals Kraft wirkt sich die Zusammensetzung der Reinigungsflüssigkeit aus, indem durch eine reduzierte Debye-Länge auch die Van der Waals Wechselwirkungen im Mikrowellenbereich gedämpft werden [66]. Ein Einfluss der Ionenkonzentration auf die Hamaker Konstante ist zwar vorhanden, aber nach LAGALY [73] sehr gering. Größere Auswirkung hat der Einsatz ionischer oder nicht-ionischer grenzflächenaktiver Substanzen in gelöster Form, welcher eine Senkung der Van der Waals Kraft bewirkt [66]. Da in dieser Arbeit die haftkraftüberwindende Ablösung von Einzelpartikeln und kohäsiven Schmutzfilmen ausschließlich mit reinem Leitungswasser erreicht wird, wird auf diese Auswirkungen nicht weiter eingegangen.

### **3.3.3 Die theoretische Abhängigkeit von der Rauheit der Werkstoffoberfläche**

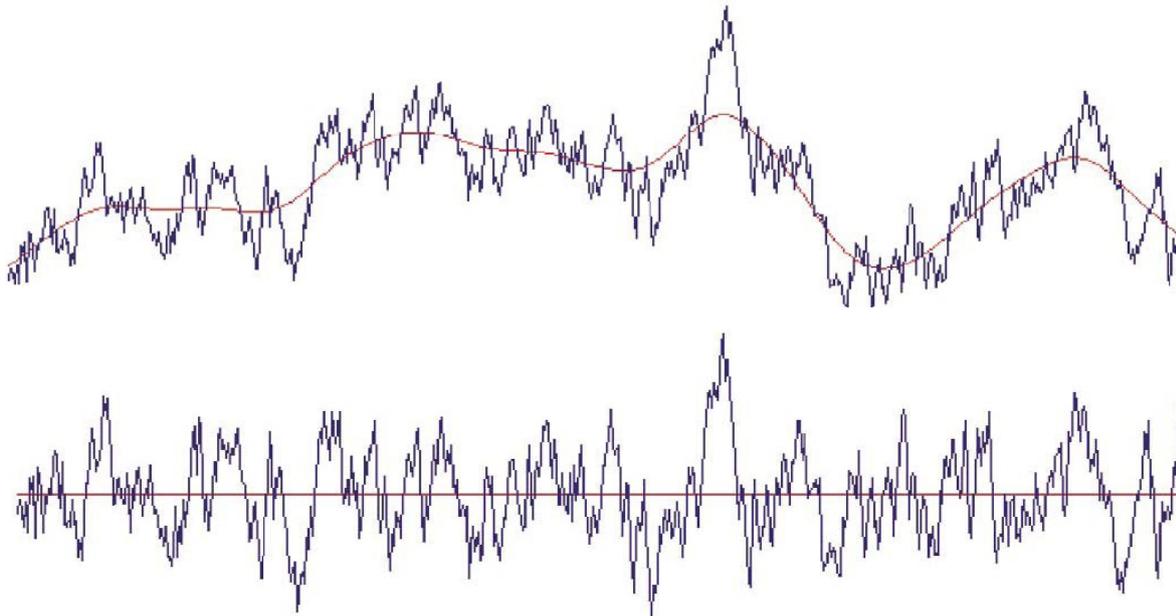
Neben dem Material einer Oberfläche kommt in dem Kontaktfall ihrer Topographie eine große Bedeutung zu. V.a. die Rauheit einer Oberfläche sorgt in Diskussionen über gesetzliche Auflagen und prozesstechnische Notwendigkeiten immer wieder für kontroverse Aussagen und Ansichten. Im Folgenden wird auf die Definition, die Messmethoden und den formellen Hintergrund der Rauheit und der theoretischen Auswirkung auf die Haftkräfte eingegangen.

#### **3.3.3.1 Definitionen und Messmethoden der Oberflächenrauheit**

Die wirkliche Oberfläche (Werkstückoberfläche) trennt einen Körper von seiner Umgebung (DIN EN ISO 4287). Das Tastschnittverfahren ist eine messtechnische Methode zur zweidimensionalen Erfassung einer Oberfläche mittels Profilschnitt: Eine Vorschubeinrichtung bewegt eine Tastspitze mit konstanter Geschwindigkeit horizontal über die Oberfläche (DIN EN ISO 3274). Das ertastete Profil ist das nach dem Tastschnittverfahren erfasste Hüllprofil der wirklichen Oberfläche. Es enthält als wichtigste Gestaltabweichungen: Formabweichungen, Welligkeit und Rauheit (DIN EN ISO 3274, DIN 4760). Die Kenngrößen werden, falls nicht anders angegeben, an einer Einzelmessstrecke definiert. Die Ergebnisse werden als Mittelwerte aus mehreren Einzelmessstrecken berechnet. Für Rauheitskenngrößen sind fünf Einzelmessstrecken Standard.

Die Rauheit einer Oberfläche wird durch die Verwendung von Rauheitskennwerten wiedergegeben. Die verschiedenen Rauheitskenngrößen sind nach DIN EN ISO 4287/4288 genormt und beziehen sich auf die Profilschnitte, gemessen mit dem

mechanischen Taster nach Herausfilterung von Welligkeiten oberhalb einer bestimmten Grenzwellenlänge.



**Abbildung 3.14: Oberflächenprofil vor dem Herausfiltern der Welligkeit (Bild oben) und danach (unten)**

### Rauheitskennwerte

Der arithmetische Mittenrauhwert  $R_a$  beschreibt den arithmetischen Mittelwert der absoluten Werte der Profilabweichung  $Z$  innerhalb der Bezugstrecke  $l$  [24]. Er wird in Europa zur Beschreibung technischer Oberflächen eingesetzt. Im englischsprachigen Raum wird häufiger der quadratische Mittenrauhwert  $R_q$  bzw. rms (root mean square average) benutzt (Abbildung 3.15).

$$R_a = \frac{1}{l} \cdot \int_0^l |Z(x)| dx \quad \text{Gl. 3.35}$$

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{l} \int_0^l Z^2(x) dx} \quad \text{Gl. 3.36}$$

Die Einzelrauhtiefe  $R_{zi}$  ist die Summe aus der Höhe der größten Profilspitze und der Tiefe des größten Profiltals des Rauheitsprofils innerhalb einer Einzelmeßstrecke. Die Rauhtiefe  $R_z$  ist der arithmetische Mittelwert der Einzelrauhtiefen  $R_{zi}$  aufeinanderfolgender Einzelmeßstrecken.

$$R_z = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n R_{zi} \quad \text{Gl. 3.37}$$

Die maximale Rauhtiefe  $R_{\max}$  ist die größte Einzelrauhtiefe innerhalb der Gesamtmeßstrecke.

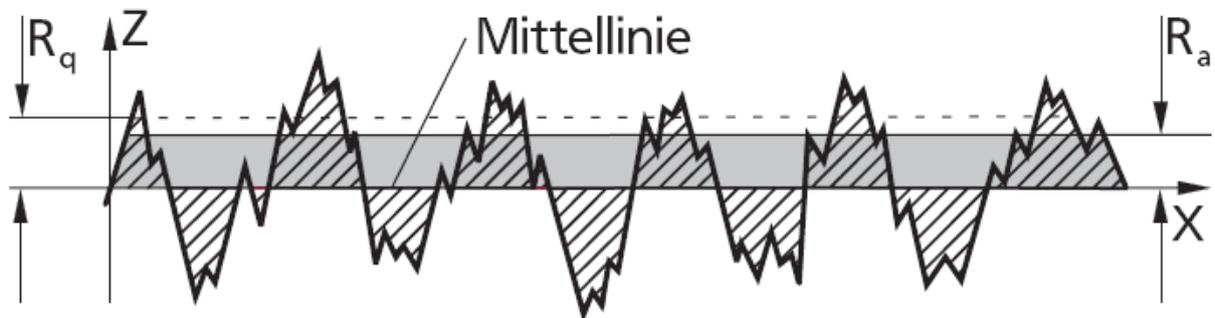


Abbildung 3.15: Darstellung des arithmetischen Mittenrauhwerts  $R_a$  und des quadratischen Mittenrauhwerts  $R_q$

In dieser Arbeit wird der in der Praxis am meisten eingesetzte  $R_a$ -Wert zur Bewertung der Oberflächenrauheit eingesetzt. Es existieren auch Ansichten, dass ein anderer Kennwert (beispielsweise  $R_z$ ) als der  $R_a$ -Wert besser geeignet wäre, um die Oberfläche hinsichtlich ihrer Reinigbarkeit zu bewerten. Für Oberflächen mit stochastischer Topographie ändert sich deren Reihenfolge jedoch praktisch nicht, egal nach welchem Rauheitskennwert sie geordnet werden.

Dabei ist zu bedenken, dass alle Rauheitskennwerte nur bedingt die wirkliche Oberflächenrauheit wiedergeben können. In Abbildung 3.16 ist dieses Problem veranschaulicht.

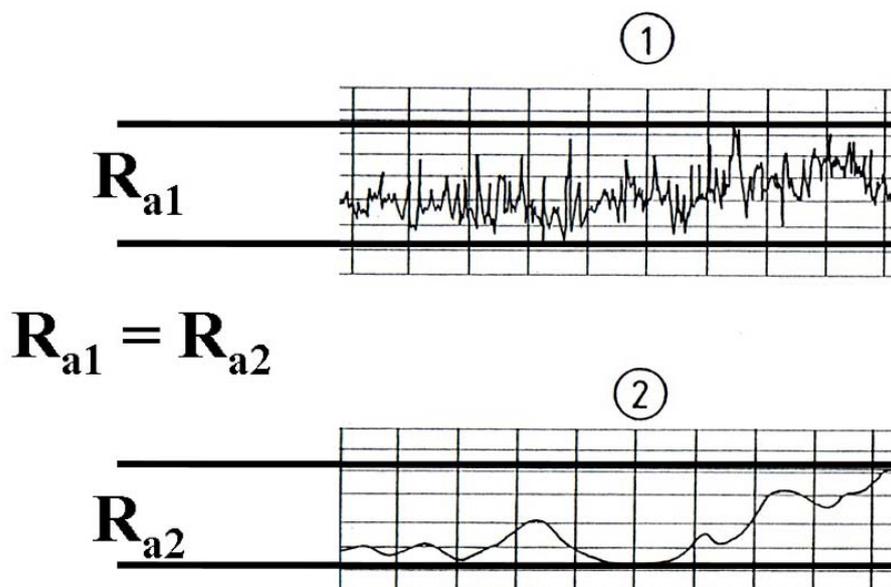


Abbildung 3.16: Problematik des  $R_a$ -Werts als charakteristischer Rauheitskennwert

Da die Rauheitswerte Kenngrößen für die Rautiefe darstellen, können topografisch sehr unterschiedliche Oberflächen gleich bewertet werden. Der Unterschied, ob die Rauheitsstruktur ein abgerundetes oder ein zackenartiges Profil aufweist, kann durch die Kenngrößen nicht wiedergegeben werden (Abbildung 3.16).

Da die Tastnadel des mechanischen Tastschnittverfahrens, welche im taktilen Verfahren über die Oberfläche geführt wird, eine genormte Größe von typischerweise  $2,5\ \mu\text{m}$  mit einem Öffnungswinkel von  $60^\circ$  haben muss, ist dem Messverfahren zusätzlich eine laterale Auflösungsgrenze gesetzt.

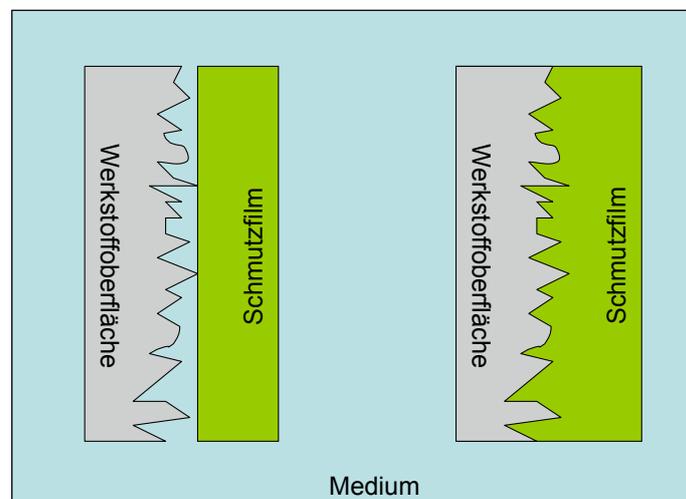
Daher bieten Hersteller anderer hochauflösender Messinstrumente, wie beispielsweise das Atomic Force Microscope oder des Weisslicht-Interferometers, die Möglichkeit einer Rauheitsbewertung an. Die Verwendung dieser Kenngrößen ist jedoch nach DIN nicht zulässig, da ihre Messprozedur stark auflösungsabhängig und nicht genormt ist und sorgt in der Diskussion von Rauheitswerten immer wieder für Verwirrungen.

### 3.3.3.2 Beeinflussung der Haftkräfte durch die Rauheit

Theoretischen Überlegungen zufolge kann die Rauheit einer Materialoberfläche die Adhäsionskräfte beeinflussen. Dabei ist der Einfluss der Rauheit auf die Van der Waals Kraft und die elektrostatische Kraft nach den erwähnten Haftsystemen zu differenzieren.

#### Platte-Platte-Modell

Für den Kontaktfall Platte-Platte muss unterschieden werden, ob die Platte, welche den Schmutzfilm darstellt, auf der Rauheit aufliegt oder ob sie die Rauheit in sich aufnimmt und die Werkstoffoberfläche vollständig benetzt (Abbildung 3.17).



**Abbildung 3.17: Unterscheidung des Platte-Platte Modells in aufliegenden und benetzenden Schmutzfilm**

Der Fall des aufliegenden Schmutzfilmes ist aufgrund des Größenunterschiedes zwischen Rauheit und Schmutzmolekülen selten. Selbst wenn die kleinste Einheit eines Filmes ein Mikroorganismus ist, dessen Durchmesser größer ist als die laterale Abmessung einer Rauheit, so wird dieser danach streben, seine Adhäsionsfläche zu vergrößern. Mikroorganismen schaffen dies beispielsweise durch die Produktion von extrazellulären polymeren Substanzen (EPS) wie Kohlenhydraten oder Proteinen, die wie ein Klebstoff zwischen den Oberflächen wirken [116].

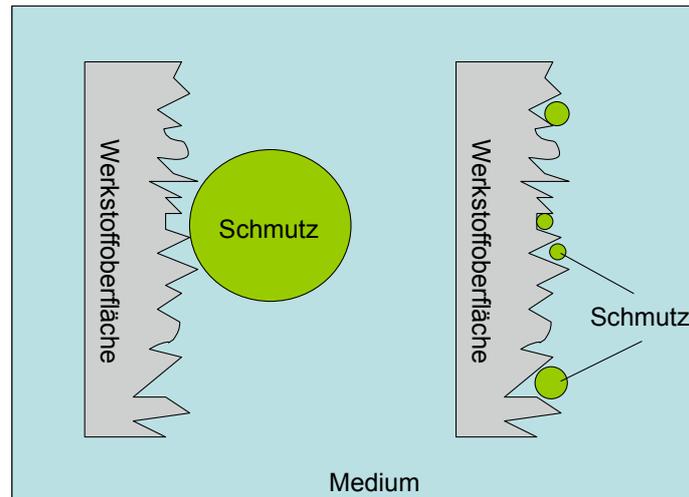
Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit auf den vollständig benetzenden Schmutzfilm eingegangen. Während sich bei dem Kontakt zweier Platten, die auf den Rauheiten aufliegen, noch Flüssigkeit zwischen ihnen befinden kann (Abbildung 3.17), gilt für den Platte-Platte Kontakt des voll benetzenden Systems das Gleiche wie für den Kontakt zweier vollkommen glatten Oberflächen. Zwischen diesen Platten befindet sich keine Flüssigkeit mehr, wodurch auch keine diffusen Schichten mehr existieren können. Der Einfluss bzw. die Existenz der elektrostatischen Abstoßung aufgrund des osmotischen Drucks der Flüssigkeitsionen ist bei direktem Kontakt daher sehr zweifelhaft.

Für den voll benetzenden Schmutzfilm bewirkt jede Oberflächenrauheit im Gegensatz zu einer glatten Oberfläche eine Vergrößerung der Kontaktfläche. Da Gleichung 3.22 die Van der Waals Kraft pro Fläche angibt, bewirkt bei konstanter Projektionsfläche eine Rauheit im Vergleich zu einer glatten Werkstoffoberfläche immer eine Vergrößerung der Haftkraft. Problematischer ist dagegen der Vergleich zwischen zwei Oberflächen unterschiedlicher Rauheit, da kein mathematischer Zusammenhang zwischen der Rauheit bzw. einem Rauheitskennwert und der absoluten Oberfläche existiert. Wie aus Abbildung 3.16 ersichtlich wurde, können unterschiedliche Oberflächenprofile den gleichen Rauheitswert besitzen, obwohl eine unterschiedliche absolute Oberfläche erwartet werden würde.

### Kugel-Platte-Modell

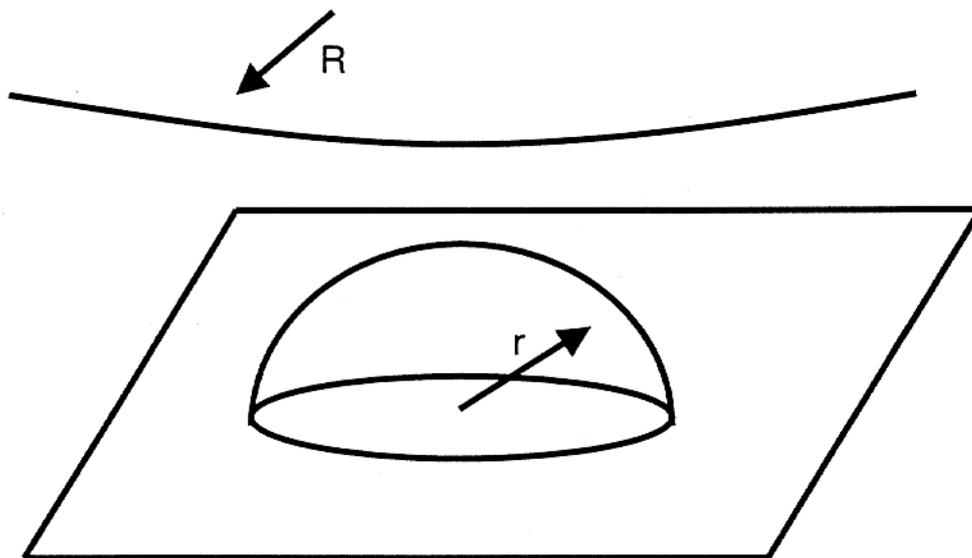
Da Van der Waalskräfte nur bei sehr kurzen Abständen zwischen Partikel und Oberfläche auftreten (1 – 100 nm) spielt die Kontaktgeometrie eine entscheidende Rolle.

Bei dem Kontaktfall Kugel-Platte ist das Größenverhältnis zwischen Rauheit und Kugel relevant, was im Rahmen der Untersuchungen als Particle-Size-Effekt benannt worden ist.



**Abbildung 3.18: Relevanz des Größenverhältnisses zwischen Rauheit und Schmutz**

Die Berechnung der Van der Waals Kraft für eine raue Oberfläche wurde von RUMPF [103] und später RABINOVICH [94] dahingehend modifiziert, dass eine kugelförmige Rauheit auf der Werkstoffoberfläche berücksichtigt wird.

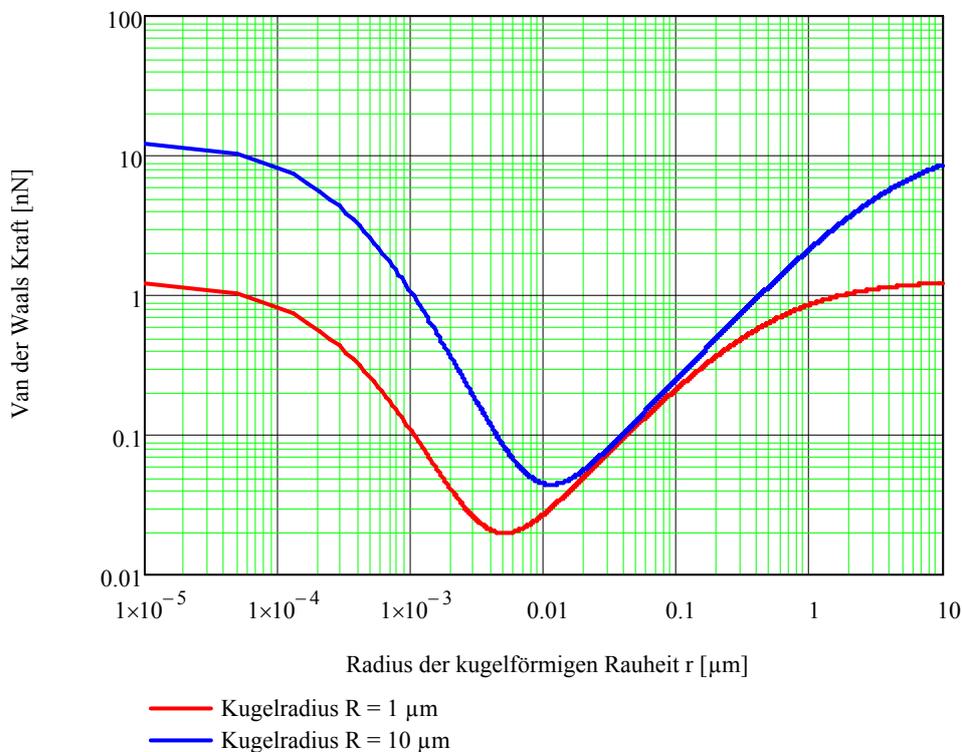


**Abbildung 3.19: Schematische Darstellung des Rumpf-Modells: glatte Kugel R auf Oberfläche mit kugelförmiger Rauheit r**

Wie in Abbildung 3.19 zu sehen ist, kommt es in dem Modell bei rauer Oberfläche zur Wechselwirkung zwischen einer einzelnen halbkugelförmigen Unebenheit ( $r$ ) auf der darunter glatten Oberfläche mit einer wesentlich größeren kugelförmigen Partikel ( $R$ ). Dabei liegen die Zentren der haftenden Partikel und der Unebenheit im Schwerpunkt auf einer Linie normal zur Oberfläche. Die Van der Waals-Wechselwirkung dieses Modells lässt sich mit folgender Gleichung beschreiben:

$$F_{\text{vdW-R}} = \frac{H}{6 \cdot a_0^2} \cdot \left[ \frac{r \cdot R}{r + R} + \frac{R}{\left(1 + \frac{r}{a_0}\right)^2} \right] \quad \text{Gl. 3.38}$$

Der erste Term in Klammern beschreibt die Wechselwirkung des haftenden Partikels mit der Rauheit. Die Haftung zwischen Partikel und glatter Oberfläche unterhalb der Rauheit wird im zweiten Term wiedergegeben. Wenn keine Unebenheit vorhanden ist ( $r = 0$ ) und für den Fall  $r \rightarrow \infty$  ergibt sich aus Gleichung 3.38 der Kontakt mit einer ideal glatten Oberfläche. Dieser Einfluss der Rauheitsgröße  $r$  nach Gleichung 3.38 ist in Abbildung 3.20 dargestellt.



**Abbildung 3.20:** Einfluss der Rauheitsgröße  $r$  auf die Van der Waals Kraft nach Rumpf für unterschiedliche Kugelradien

Es ist ein deutliches Minimum der Van der Waals Kraft zu erkennen, dessen Ort von der Größe der haftenden Partikel abhängt. Bei sehr geringen Rauheiten (in Abbildung 3.20 bei  $r < 0,1 \text{ nm}$ ) ist ein geringer Einfluss der Rauheit festzustellen. Die Partikel interagiert stark mit der Oberfläche unterhalb der Rauheit. Die Rauheit selbst wirkt in diesem Bereich wie ein Abstandshalter zwischen Partikel und Oberfläche. Mit steigendem Rauheitsradius  $r$  nimmt dieser Abstand zu und die Interaktion zwischen Partikel und Oberfläche wird abgeschwächt. Mit weiter ansteigendem Rauheitsradius steigt zwar der Abstand zur Oberfläche unter der Rauheit weiter an, aber die

Wechselwirkung zwischen Partikel und der Rauheit selbst wird immer stärker. Das Minimum wird durchlaufen. Ist die Rauheit in der Größe der Partikel ähnlich, so ist deren Wechselwirkung auch der Kraft ähnlich, die aus der Interaktion der Partikel und einer unendlichen, glatten Oberfläche resultieren würde.

Abbildung 3.20 ist zu entnehmen, dass nicht nur die absolute Größe der Van der Waals Kraft von dem Partikeldurchmesser abhängt, sondern auch die relative Auswirkung der Rauheit. Während bei einer Rauheit von  $r = 1 \mu\text{m}$  für das  $1 \mu\text{m}$  Partikel in Abbildung 3.20 bereits der Bereich der asymptotischen Annäherung an den Maximalwert erreicht ist, steigt die Van der Waals Kraft bei der  $10 \mu\text{m}$  Partikel mit zunehmender Rauheit noch weiter an.

Es ist von Bedeutung, dass im Vergleich zu einer ideal glatten Oberfläche eine Rauheit nach diesem Modell nie eine Verstärkung der Haftkraft bewirken kann, sondern immer nur eine Reduktion. Werden jedoch zwei unterschiedliche Rauheiten miteinander verglichen, so kann die größere Rauheit zu einer höheren Van der Waals Kraft führen, wie beispielsweise in dem Bereich der Rauheitsradien von  $0,1 \mu\text{m}$  bis  $1 \mu\text{m}$  in Abbildung 3.20. Ist das Partikel durch die Rauheit in der Lage, an zwei oder mehreren Stellen mit der Oberfläche in Kontakt zu kommen, so kann dies die Haftkraft zusätzlich erhöhen.

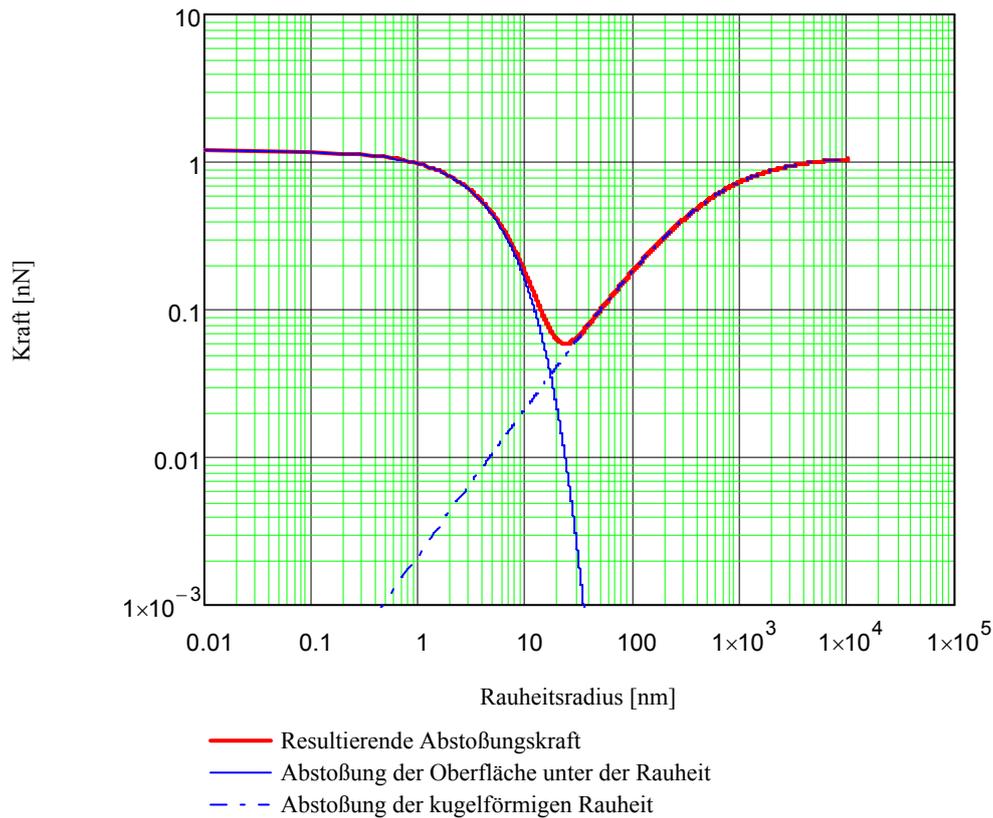
Das Rumpf-Modell setzt voraus, dass das Zentrum der Unebenheit auf der Oberfläche liegt. Rabinovich baut auf dem Rumpf-Modell auf, um den Oberflächenunebenheiten in der Realität gerecht zu werden. Nach Rabinovich muss das Zentrum der Unebenheit nicht auf der Oberfläche liegen und kann auf die Verwendung des rms-Wertes anstelle eines Rauheitsradius  $r$  umgerechnet werden.

Nach Rabinovich berechnet sich die Van der Waals Kraft nach folgender Gleichung:

$$F_{\text{vdW-RR}} = \frac{H \cdot R}{6 \cdot (a_0 + a)^2} \cdot \left[ \frac{1}{1 + \frac{R}{1,485 \cdot \text{rms}}} + \frac{1}{\left(1 + \frac{1,484 \cdot \text{rms}}{a_0 + z_0}\right)^2} \right] \quad \text{Gl. 3.39}$$

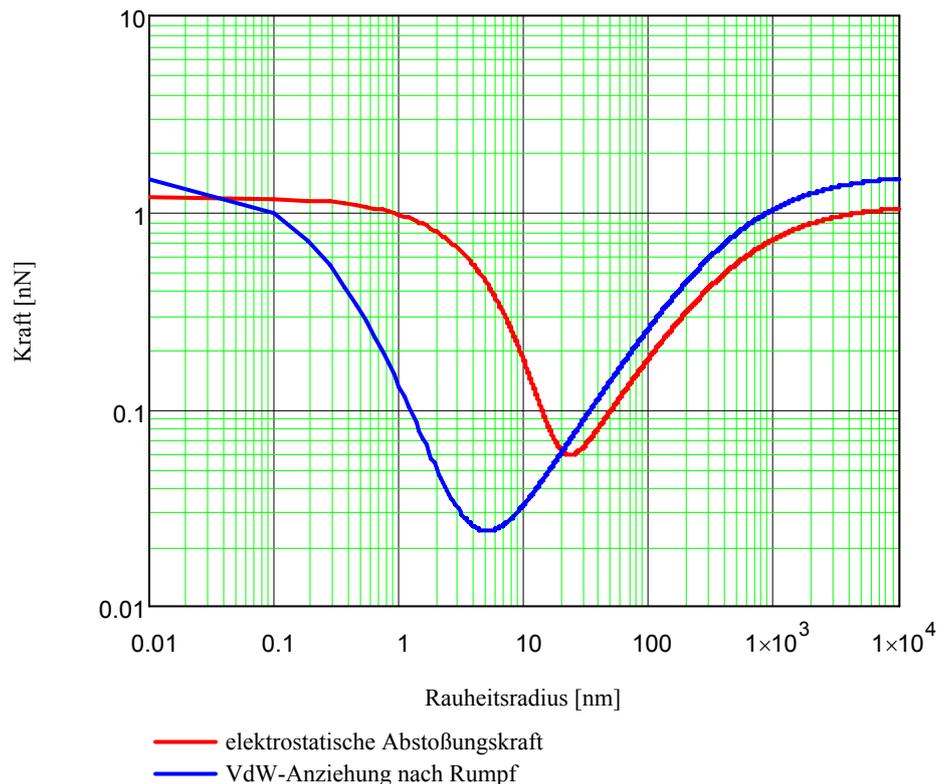
Wie aus Gleichung 3.39 zu sehen ist, hat die Modifizierung nach Rabinovich den Charakter der Gleichung nicht wesentlich verändert und wird deshalb nicht weiter diskutiert.

Die elektrostatische Abstoßung wird in dem Kugel-Platte Modell durch die Rauheit auf der Oberfläche analog zur Van der Waals Kraft beeinflusst. Auch hier wirkt eine im Vergleich zu dem Partikel kleine Rauheit wie ein Abstandshalter. Ist die Rauheit groß genug, so ist nur die Wechselwirkung zwischen ihr und dem Partikel relevant. In Abbildung 3.21 sind die Wechselwirkungen zwischen Partikel und Oberfläche, zwischen Partikel und Rauheit und die summarisch resultierende Wechselwirkung dargestellt.



**Abbildung 3.21: Rauheitsabhängigkeit der elektrostatischen Abstoßungskraft**

Werden für den Kontakt einer Partikel an einer rauen Wand die beiden Kurven der resultierenden elektrostatischen Abstoßung und der Van der Waals Anziehung übereinander gelegt, so wird deutlich, dass ihre Minima nicht bei dem gleichen Rauheitsradius liegen. Dies hat zur Folge, dass es zu zwei Schnittpunkten der Kurven kommen kann. Zwischen den Schnittpunkten der Kurven dominiert die elektrostatische Abstoßung, da die Van der Waals Kraft durch die kleinen Rauheiten aufgrund der ausgeprägteren Anstandsabhängigkeit stärker reduziert wird. Außerhalb dieses Rauheitsbereiches dominiert die Van der Waals Kraft (Abbildung 3.22).



**Abbildung 3.22: Abhängigkeit der Van der Waals Kraft und der elektrostatischen Abstoßungskraft von der Oberflächenrauheit für eine 1 µm Kugel**

Die Aussage dieses Diagramms ist, dass es theoretisch einen Rauheitsbereich gibt, in welchem ohne chemische Veränderung des Systems, die elektrostatische Abstoßung dominiert. Dies wäre für die Reinigung der Idealfall, da hier ohne Krafteinwirkung von außen (z.B. durch die Reinigungsflüssigkeit) die Partikel abgelöst bzw. gar nicht anhaften würden. In dem hier geschilderten Beispiel ist die dafür benötigte Rauheit  $0,04 \text{ nm} < r < 20 \text{ nm}$ .

### 3.3.4 Haftkraftverstärkungen durch Verformung der Kontaktpartner

In diesem Kapitel wird der Einfluss der Verformung von nur einem Kontaktpartner, nämlich einer anhaftenden Schmutzpartikel, diskutiert. In den bisherigen Theorien wird nicht nur von ideal runden Partikeln oder Kugeln ausgegangen, sondern zudem noch von unverformbaren Partikeln. Kommt es jedoch durch die Haftkraft oder eine weitere äußere Kraft bei Kontakt mit einer Platte zur Deformation der Partikel, so kann dies deutliche Auswirkungen auf die Haftung haben.

Die Berücksichtigung der Deformation der Verunreinigung für das Haftsystem Platte-Platte macht keinen Sinn, da die Auswirkungen der Verformung auf der Ausbildung einer größeren Kontaktfläche beruhen. Für den Kontaktfall Kugel-Platte hat HERTZ

[48] [49] eine Theorie zur elastischen Verformung im Kontaktbereich entwickelt. Darauf beruhen viele Weiterentwicklungen, die für unterschiedliche Materialkombinationen ihre Gültigkeit besitzen, wie z.B. das Johnson-Kendall-Roberts (JKR) – Modell, das Derjaguin-Müller-Toporov (DMT) – Modell oder das Modell nach Maugis-Dugdale [22] [46] [48] [57] [58] [59] [80] [86] [114].

Für das Kugel-Platte Modell kann nach HERTZ der entstehende Kontaktkreisradius  $r_a$  wie folgt berechnet werden [49]:

$$\left(\frac{r_a}{d}\right)^3 = \frac{3}{8} \cdot \frac{F_N}{d^2} \cdot \frac{1-\nu_P^2}{E} \quad \text{Gl. 3.40}$$

Nach der Hertzschen Theorie wächst die Normalspannung im Kontaktkreis von 0 am äußeren Rand auf das Maximum  $p_{\max}$  im Kontaktkreismittelpunkt an (Abbildung 3.23).

$$p_{\max} = \frac{3}{2} \cdot \frac{F_N}{\pi \cdot r_a^2} \quad \text{Gl. 3.41}$$

Wenn der Wert  $p$  die Fließgrenze  $p_{pl}$  der Partikel erreicht, beginnt die plastische Deformation. Es bildet sich ein plastisch verformter Kontaktbereich des Radius  $r_{pl}$ . Dem idealen Kugel-Platte-Kontakt wird ein kleiner Platte-Platte-Kontakt überlagert, wodurch sich die Van der Waals Anziehung ändert.

$$F_{\text{VdW-Deformiert}} = F_{\text{VdW-Kugel-Platte}} + F_{\text{VdW-Platte-Platte}} = \frac{H \cdot d}{12 \cdot a_0^2} + \frac{H \cdot r_a^2 \pi}{6 \cdot \pi \cdot a_0^3} \quad \text{Gl. 3.42}$$

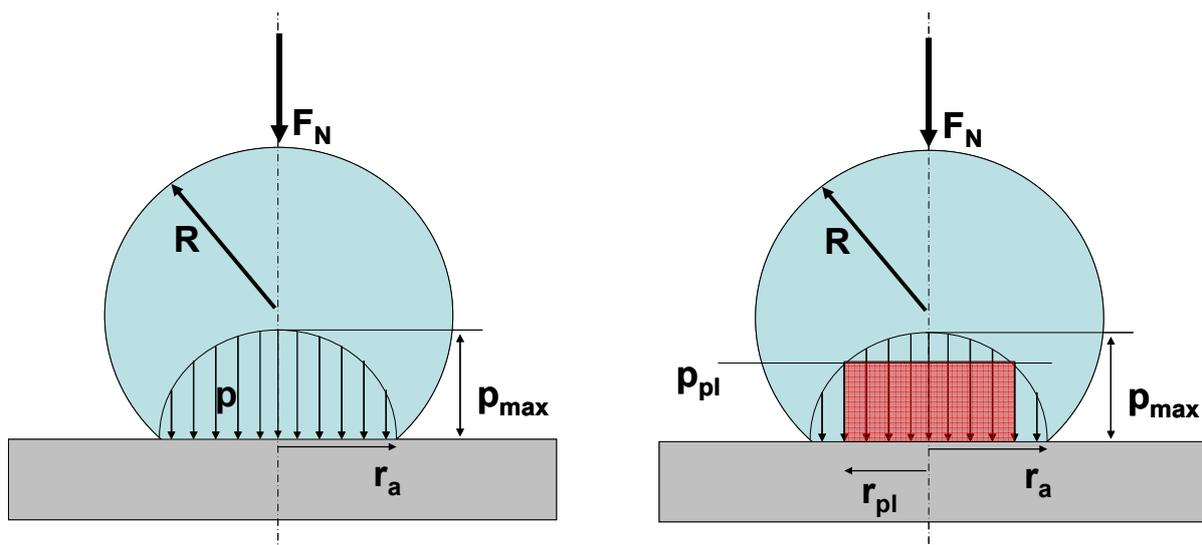


Abbildung 3.23: Spannungsverteilung innerhalb der Kontaktzone zwischen Partikel und Oberfläche im elastischen (links) und plastischen Fall (rechts)

Nach RUMPF [102] bewirkt die elastische Deformation an sich keine wesentliche Vergrößerung der zur Ablösung notwendigen Trennkraft. Die durch die reversible Verformung gespeicherte Energie wird beim Entlasten oder beim beginnenden Ablösen wieder freigesetzt. Lediglich für die Haftkraft während der Belastung ist ein Anstieg durch das Entstehen mehrerer Kontaktstellen möglich.

Die plastische Deformation kann dagegen die Haft- und Trennkraft von Partikeln sehr stark beeinflussen. Die Van der Waals Kraft reicht im Allgemeinen nicht aus, um plastische Deformation hervorzurufen, so dass dafür meist zusätzliche, äußere Kräfte benötigt werden [102].

Bei Kontakt einer Partikel mit einer Rauheit kann trotz reduzierter Haftkraft die Verformung bereits bei kleineren Spannungen von elastisch zu plastisch umschwenkt. Durch den Radius der Rauheit wird der Druck  $p$  in den Partikeln gesteigert. PEUKERT und ZHOU [133] errechneten die Vergleichsspannung, die in Anwesenheit einer kugelförmigen Rauheit bei unterschiedlichen Normalkräften (Haftkräfte oder äußere Kräfte) resultiert. Danach kann bei Anwesenheit kleiner Rauheiten auf der Oberfläche die kritische Spannung bzw. die Fließgrenze  $p_{pl}$  der Partikel bereits durch sehr kleine Normalkräfte erfolgen. Bei weichen Partikeln mit niedriger Fließgrenze  $p_{pl}$  können dafür die Van der Waals Kräfte ausreichen (Abbildung 3.24).

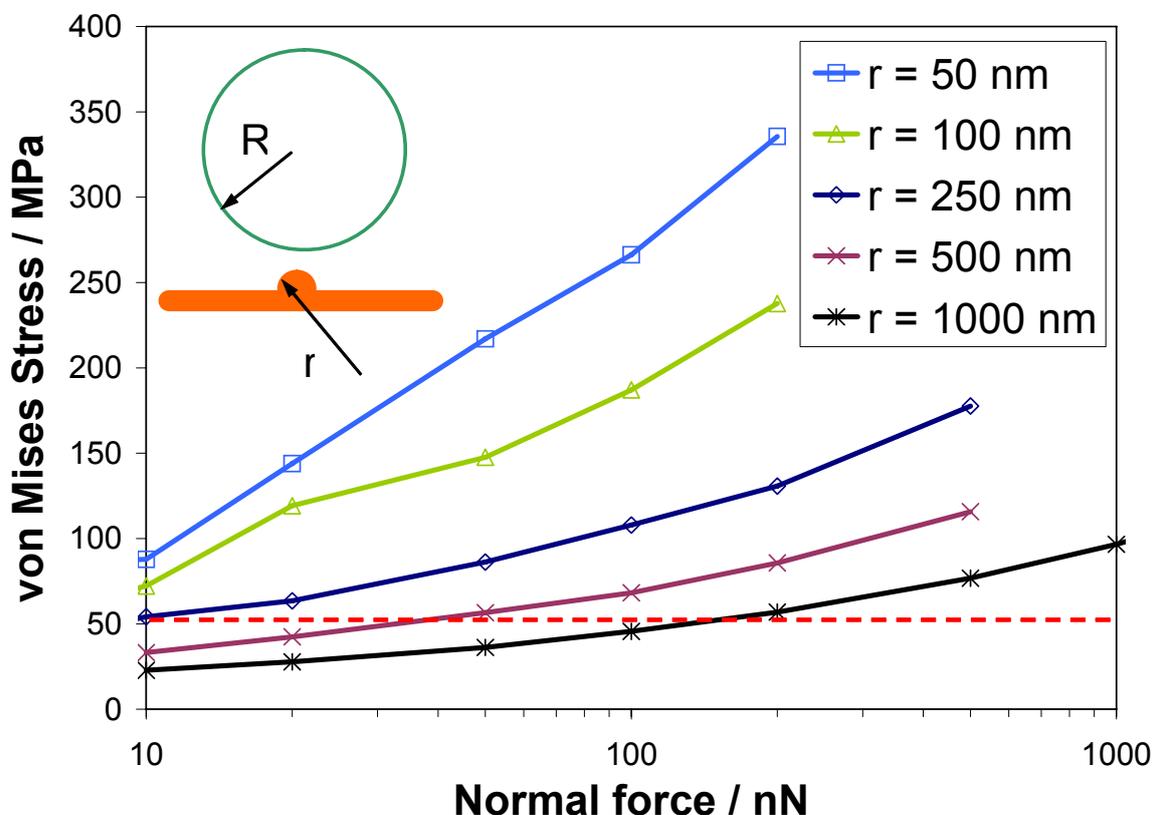
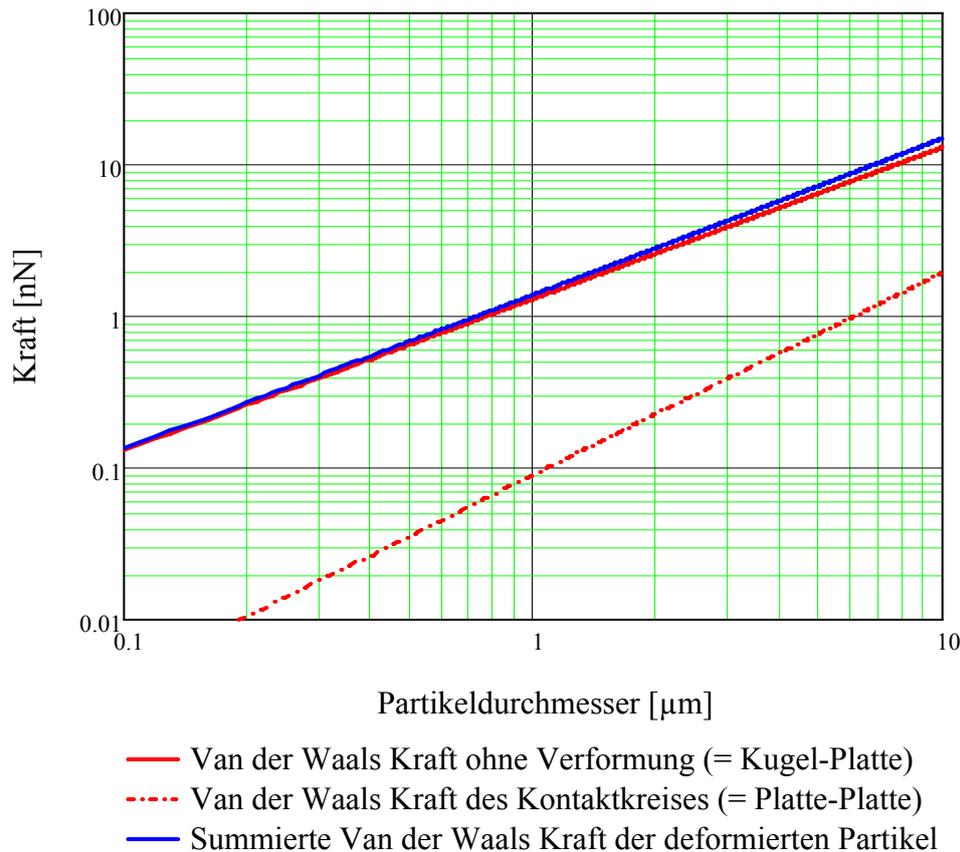


Abbildung 3.24: Vergleichsspannung in einer 10  $\mu\text{m}$  Polystyrolpartikel bei Kontakt mit einer Rauheit des Radius  $r$  in Abhängigkeit der Normalkraft (Polystyrol:  $E = 3300 \text{ MPa}$ ,  $p_{\text{max}} = 50 \text{ MPa}$ )

Die Stärke der Deformation hängt demnach nicht nur von der Kraft und von der Fließgrenze des Partikels ab, sondern auch von der Größe der Partikel und von der Rauheit bzw. der Topographie der Oberfläche im Kontaktbereich.

In dem Fall, dass die Van der Waals Kraft die einzige belastende Kraft auf die Partikel darstellt, bewirkt diese durch das Ausbilden einer Kontaktfläche ihre eigene Vergrößerung. Unter der Annahme, dass die komplette Deformation plastisch wäre, wurde in Abbildung 3.25 für ein Polystyrolpartikel ( $E = 3300 \text{ MPa}$ ) diese selbst induzierte Vergrößerung gegenüber einer glatten Oberfläche berechnet.



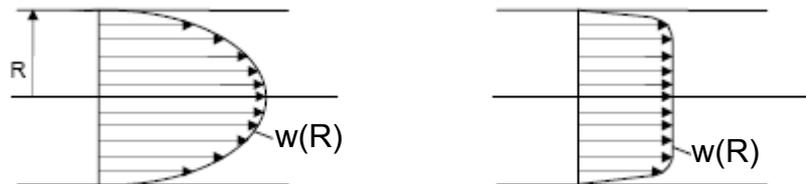
**Abbildung 3.25: Anstieg der Van der Waals Kraft durch plastische Verformung**

Der Einfluss durch die Vergrößerung der Kontaktfläche aufgrund der plastischen Verformung der Polystyrolpartikel ist sehr gering. Um eine relevanten Haftkraftverstärkung feststellen zu können, bedarf es daher einer äußeren Krafteinwirkung oder einer weicheren Partikel.

### 3.4 Relevante Grundlagen der Strömungslehre

Werden Rohrleitungen, Maschinen und Apparate von einem Fluid (z.B. Wasser) durchströmt, so kommt es zu Druckverlusten innerhalb der Rohrleitung, der Maschine, etc. Diese Druckverluste kommen durch Wandschubspannung, besonders

bei Querschnittsverengungen, Krümmern, Ventilen und anderen Einbauten zustande. Die Wandschubspannung bewirkt das Ausbilden eines Strömungsprofils, da unmittelbar an der Wand die Geschwindigkeit gegen Null geht und zur Strömung auf den Maximalwert ansteigt. Die Intensität der Druckverluste ist abhängig vom Strömungsprofil, welches wiederum von der Strömungsgeschwindigkeit abhängt. Hierbei wird zwischen laminarer und turbulenter Strömung unterschieden [60]. Die unterschiedlichen Strömungszustände sind in Abbildung 3.26 dargestellt:



**Abbildung 3.26: laminare (links) und turbulente (rechts) Geschwindigkeitsverteilung zur Kennzeichnung der Strömungsart**

Die charakteristische Größe, um die Strömungsprofile voneinander abzugrenzen, ist die Reynoldszahl. Die Reynoldszahl gibt das Verhältnis von Trägheitskräften zu Zähigkeits- bzw. Reibungskräften wider und wird durch folgende Gleichung berechnet:

$$\mathbf{Re} = \frac{\mathbf{w} \cdot \mathbf{d}_z}{\nu} \quad \text{mit} \quad \mathbf{w} = \frac{\dot{\mathbf{V}}}{\mathbf{A}_z} \quad \text{Gl. 3.43}$$

$\mathbf{A}_z$  ist die Rohrquerschnittsfläche,  $\mathbf{d}_z$  der Rohrdurchmesser,  $\mathbf{w}$  die mittlere Strömungsgeschwindigkeit und  $\nu$  die kinematische Viskosität. Die kinematische Viskosität errechnet sich aus der dynamischen Viskosität dividiert durch die Dichte des Fluids:  $\nu = \eta/\rho$ .

Als charakteristische Reynoldszahl der Rohrströmung, die die beiden Strömungszustände von einander unterscheidet, gilt  $\text{Re} = 2320$ .

Bei laminarer Strömung bewegen sich die einzelnen Fluidelemente getrennt voneinander auf parallelen Bahnen, wobei es zu keiner Vermischung zweier parallel verlaufender Bahnen kommt [99]. Ist die Strömung turbulent, so kommt es zu Querströmungen. Es treten Wirbel auf und es kommt dadurch zu Vermischungen. Dabei findet ein Masse-, Impuls- und Energieaustausch statt [21] [64] [117]. Auch bei einer turbulenten Strömung existiert eine wandnahe laminare Unterschicht, in der die Strömungsgeschwindigkeit gegen Null geht und in der keine turbulente Austauschbewegung mehr stattfindet [131]. Die turbulenten Schwankungsbewegungen kommen in dieser laminaren Unterschicht zur Ruhe [89][90].

CLEAVER und YATES [18] stellen dagegen die Hypothese auf, dass Wirbel aus der turbulenten Strömung trotzdem in die laminare Unterschicht einschlagen.

Ist der Strömungsquerschnitt nicht kreisförmig, so muss als Rohrdurchmesser  $d$  der gleichwertige Durchmesser  $d_g$  verwendet werden:

$$d_g = 4 \cdot \frac{A_s}{U} \quad \text{Gl. 3.44}$$

Mit  $s$  als die Höhe und  $b$  die Breite des Kanals ergibt sich mit der Querschnittsfläche  $A_s = s \cdot b$  und dem Umfang des Kanalquerschnitts  $U = 2s + 2b$  für den gleichwertigen Durchmesser  $d_g$ :

$$d_g = \frac{4 \cdot s \cdot b}{2 \cdot s + 2 \cdot b} \quad \text{Gl. 3.45}$$

### 3.5 Die Kraftübertragung durch das strömende Fluid

Strömt aus einem großen Vorratsbehälter eine Flüssigkeit in ein Rohr, so bildet sich nach dem Einlauf die sogenannte Einlaufströmung aus. Die Geschwindigkeitsverteilung über den Querschnitt ändert sich aufgrund der Wandschubspannung bis es zur Ausbildung eines Strömungsprofils kommt. Um die Strömung aufrecht zu erhalten, muss die Viskosität (die temperatur- und stoffabhängig ist) überwunden werden und aufgrund der Wandschubspannung wird auf die Wandfläche oder Schmutzfilmfläche  $A_F$  eine Kraft übertragen. Für newtonsche Fluide wie Wasser ist die Wandschubspannung  $\tau_w$  dem Geschwindigkeitsgradienten und der Viskosität proportional und es gilt:

$$\tau_w = \frac{F}{A_F} = \eta \cdot \left( \frac{\partial u}{\partial y} \right)_w$$

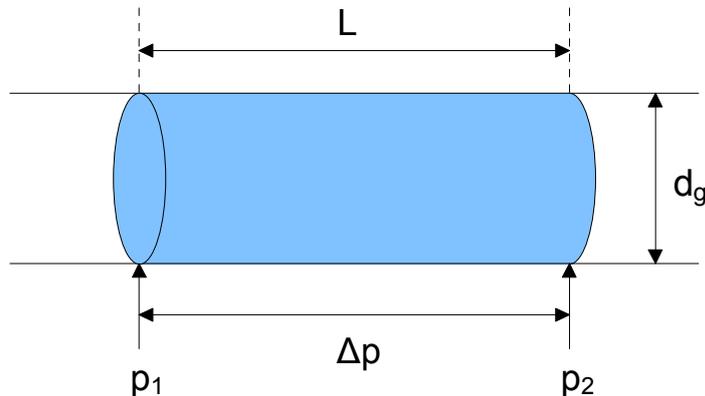
Die Wandschubspannung  $\tau_w$  hat entscheidenden Einfluss auf die Ablösung von Schmutz an der Werkstoffoberfläche [56]. Wird eine voll ausgebildete turbulente Strömung vorausgesetzt, so gilt folgende Gleichung:

$$\tau_w = \frac{\Delta p \cdot d_g}{4 \cdot L} \quad \text{Gl. 3.46}$$

Diese Gleichung gilt für die wandnahe, laminare Unterschicht. Dabei bezeichnet  $d_g$  den gleichwertigen Durchmesser des Rohres,  $L$  die Länge und  $\Delta p$  die Druckdifferenz zwischen Anfang und Ende der Messtrecke  $L$  (Abbildung 3.27). Bezogen auf die mittlere Geschwindigkeit des Fluids gilt:

$$w = \frac{\Delta p \cdot d_g^2}{32 \cdot \eta \cdot L}$$

Gl. 3.47



**Abbildung 3.27: Differenzdruckmessung in einer Rohrströmung zur Bestimmung der Wandschubspannung**

Berechnungen der Dicke der laminaren Unterschicht im Strömungskanal zeigen, dass sich bei der Partikelablösung die verwendeten Partikel bei allen einstellbaren Strömungsgeschwindigkeiten in der laminaren Unterschicht des Fluids auf der Werkstoffoberfläche befinden. Die Dicke  $\delta_s$  der laminaren Unterschicht berechnet sich aus der kinematischen Viskosität  $\nu$ , der Fluidichte  $\rho$  und der wirkenden Wandschubspannung  $\tau_w$  zu:

$$\delta_s = \nu \cdot \sqrt{\frac{\rho}{\tau_w}}$$

Gl. 3.48

Die Wandschubspannung kann auch mit Hilfe der Rohrreibungszahl  $\lambda$ , der Dichte und der mittleren Fließgeschwindigkeit  $w$  ermittelt werden:

$$\tau_w = \frac{\lambda \cdot \rho \cdot w^2}{8}$$

Gl. 3.49

Sind Dichte und Strömungsgeschwindigkeit bekannt, so kann mit Hilfe von Blassius die Rohrreibungszahl ermittelt werden [117]:

$$\lambda = \frac{64}{\text{Re}} \quad (\text{laminar})$$

Gl. 3.50

$$\lambda = \frac{0,316}{\text{Re}^{0,25}} \quad (\text{turbulent})$$

Gl. 3.51

Ist die Rohrreibungszahl bekannt, kann die Wandschubspannung ebenfalls berechnet werden.

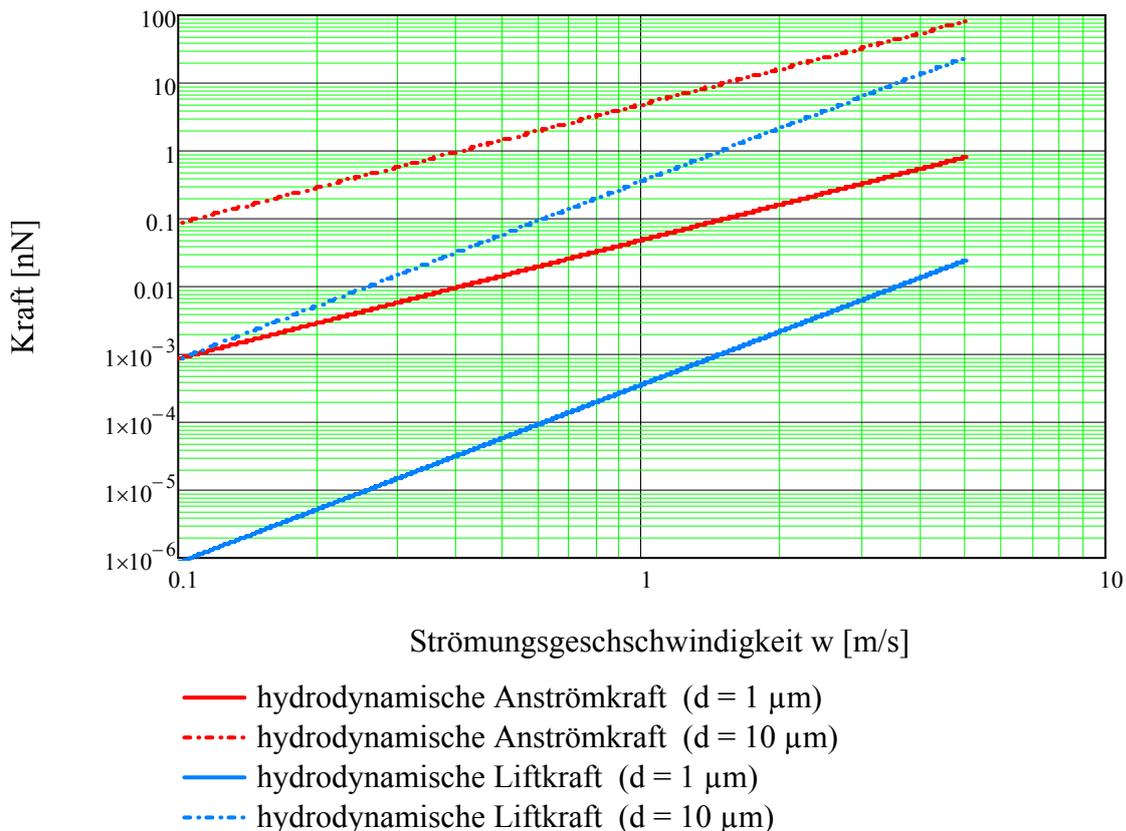
Die hydrodynamische Anströmkraft  $F_A$  (tangential zur Oberfläche) auf ein Partikel in der laminaren Unterschicht lässt sich aus der Wandschubspannung und dem Partikeldurchmesser errechnen [52] [122] [124]:

$$F_A = 8 \cdot d^2 \cdot \tau_w \quad \text{Gl. 3.52}$$

Wird eine Partikel durch die Wandnähe mit einem asymmetrischen Geschwindigkeitsprofil angeströmt, so entsteht eine Liftkraft senkrecht zur Anströmrichtung, welche in die Hauptströmung gerichtet ist. Folgende Beziehung gilt für die angeströmten Partikel [100].

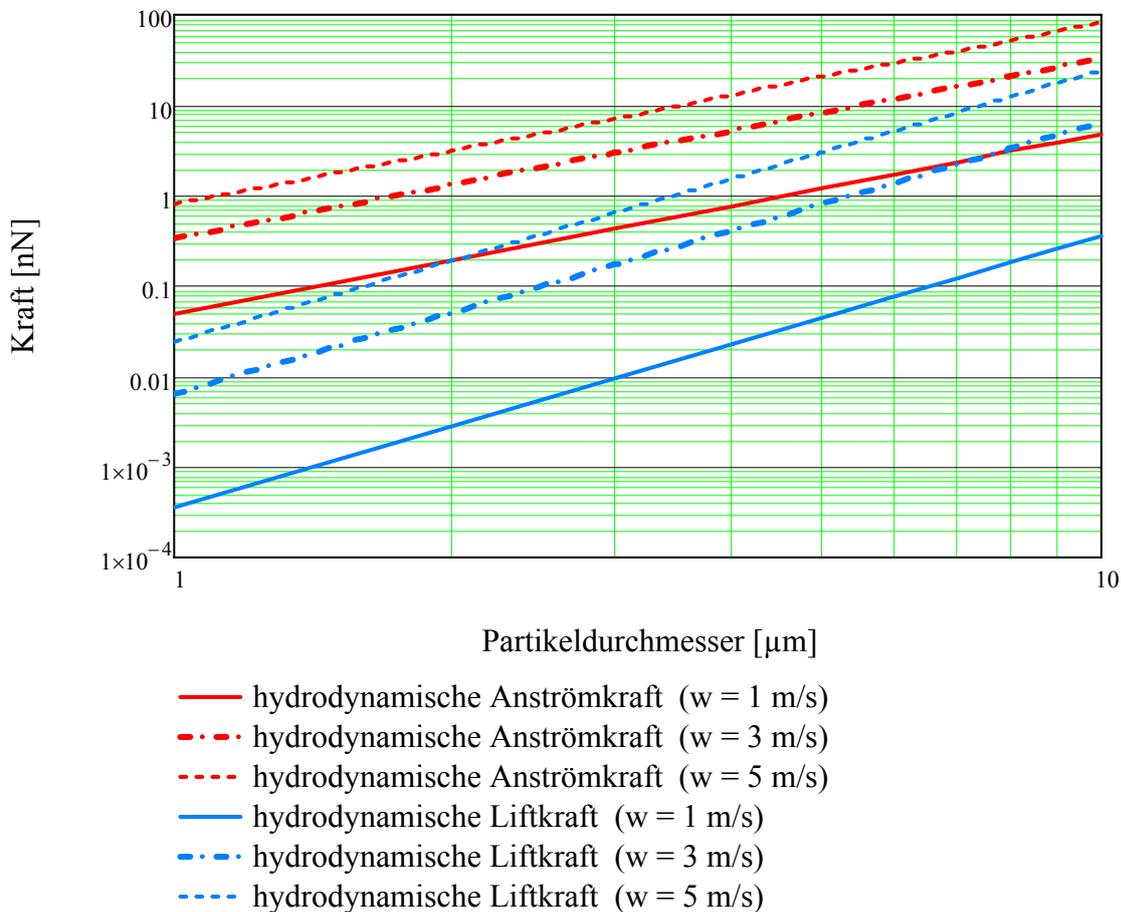
$$F_L = c \cdot \frac{\tau_w^{1,5} \cdot \rho^{0,5} \cdot d^3}{\eta} \quad \text{Gl. 3.53}$$

Der Faktor  $c$  resultiert aus der asymmetrischen Anströmung einer Partikel an der Wand. Dieser wird von RUBIN [100] mit  $c = 0,76$  angegeben. In einem breiten, für diese Arbeit relevanten Strömungsgeschwindigkeits-Spektrum ist die normal zur Oberfläche wirkende Liftkraft geringer als die tangential Anströmkraft (Abbildung 3.28).



**Abbildung 3.28: Vergleich zwischen der tangentialen Anströmkraft und der normalen Liftkraft einer wandnahen Partikel**

Da der Partikeldurchmesser  $d$  in der dritten Potenz in die Berechnung der Liftkraft und quadratisch in die Berechnung der Anströmkraft eingeht, wirkt sich die Liftkraft besonders bei großen Partikeln aus.



**Abbildung 3.29: Vergleich zwischen Liftkraft und Anströmkraft in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers**

Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass zur tangentialen Ablösung einer Partikel bereits Trennkräfte ausreichen, die ca. den Faktor 10 - 1000 kleiner sind als die in normaler Richtung benötigten Kräfte [18] [47] [52] [101] [125], so relativiert dies den Einfluss der Liftkraft. Für den Faktor 0,76 (Gl. 3.53) findet man in der Literatur, teilweise in Abhängigkeit von der betrachteten Partikelgröße, unterschiedliche Werte [81] [104] [105]. Da im Rahmen dieser Arbeit keine Absolutwerte verglichen werden, wird auf deren Hintergründe nicht näher eingegangen.

Auftriebs- und Gewichtskräfte der umströmten Partikeln sind ebenfalls um Größenordnungen kleiner als die Haftkräfte und die hydrodynamische Kraft  $F_H$ . Sie werden daher vernachlässigt [52] [101] [122].

### 3.6 Die diffusive Auflösung von Rückständen

Wird eine Verschmutzung auf der Werkstoffoberfläche durch das Reinigungsmedium nicht rein mechanisch abgelöst, sondern aufgelöst, so findet ein Stoffübergang von der verschmutzten Oberfläche in das Reinigungsmittel statt. Für diesen Stoffübergang bei der Reinigung ist die Diffusion bzw. die innere Energie des Systems die entscheidende Triebkraft [51]. Diffusion ist der Materietransport, der in einem System oder an Phasengrenzen auftritt und zu einem Konzentrationsausgleich führt [25].

Bereits EINSTEIN [31] interpretierte die bei der Diffusion vorhandene Brownsche Molekularbewegung mit der zufälligen Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Unter Diffusion wird der Transport von gasförmigen oder gelösten Stoffen oder Energie verstanden, bei dem sich die Materiebausteine (i.d.R. Atome, Moleküle oder Ionen) im statistischen Mittel durch Brownsche Molekularbewegung temperaturabhängig bewegen. Diffusion herrscht demnach immer, auch ohne Konzentrationsunterschied. Erst durch den Konzentrationsgradienten entsteht aus statistischen Gründen ein Netto-Transport von der höheren zur niedrigeren Konzentration. Es findet ein Ausgleich des Konzentrationsunterschiedes statt, bis sich ein stationärer Zustand, das thermodynamische Gleichgewicht, einstellt [91].

Bereits diese allgemeinen Beschreibungen der Diffusion zeigen, dass für einen bestimmten gelösten Stoff der Übergang von einer Phase in die andere zeitabhängig ist und von der Temperatur und dem Konzentrationsgefälle abhängt [42]. Dieser Vorgang ist meist ein sehr langsamer Prozess, wobei die Bewegungsgeschwindigkeit der Moleküle (Stofftransportkoeffizient) in Gasen um etwa drei Zehnerpotenzen größer ist als in Flüssigkeiten und nochmals um etwa drei Zehnerpotenzen größer als in Feststoffen [3] [19].

Das Gesetz der Diffusion ist erstmals von GRAHAM [42] und FICK (Ficksche Gesetze [32]) formuliert worden (Kap. 3.6.1). Die Fickschen Gesetze beschreiben den Stoffübergang nur in ruhendem Medium. Bewegen sich die beiden Phasen relativ zueinander, so muss die Berechnung des Stoffübergangs daran angepasst werden (Kap. 3.6.2) [108].

#### 3.6.1 Die Fickschen Gesetze als Grundlage des Stoffübergangs

Die Anwendung der Fickschen Gleichungen auf den Fall der Reinigung ist möglich und wird in der Literatur ebenfalls vorgeschlagen [69] [128] [129].

Die Teilchenstromdichte (Flux)  $J$  beschreibt die „Geschwindigkeit“ der Diffusion und wird entweder definiert als die Anzahl der Atome, die pro Zeiteinheit durch eine

Flächeneinheit diffundieren oder in Zusammenhang mit dem Massenstrom die Masse der Atome, die pro Zeiteinheit durch eine Flächeneinheit diffundiert [32].

$$\mathbf{J} = \frac{1}{A} \cdot \frac{dm}{dt} \quad \text{Gl. 3.54}$$

Das 1. Ficksche Gesetz für eindimensionale Diffusion macht eine quantitative Aussage über die im statistischen Mittel gerichtete Bewegung von Teilchen, d.h. wie viele Teilchen einer Stoffmenge sich pro Zeiteinheit durch eine Flächeneinheit, die senkrecht zur Diffusionsrichtung liegt, netto bewegen.

$$\mathbf{J} = \mathbf{D} \cdot -\frac{\partial c}{\partial x} \quad \text{Gl. 3.55}$$

Die Teilchenstromdichte (Flux)  $\mathbf{J}$  in  $x$ -Richtung ist proportional dem Diffusionskoeffizienten  $D$  und dem Konzentrationsgradienten  $\partial c/\partial x$ . Das negative Vorzeichen in der Gleichung bedeutet, dass die Diffusion in Richtung niedrigerer Konzentrationen (Konzentrationsgradienten) verläuft.

Das 2. Ficksche Gesetz für eindimensionale Diffusion stellt eine Beziehung zwischen zeitlichen und örtlichen Konzentrationsunterschieden dar. Es eignet sich, im Gegensatz zum 1. Fickschen Gesetz, das einen stationären (zeitunabhängigen) Diffusionsfluss mit ortsabhängigen Konzentrationsprofilen beschreibt, zur Darstellung instationärer (zeitabhängiger) Diffusion [32].

Das 2. Ficksche Gesetz lautet:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \mathbf{D} \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad \text{Gl. 3.56}$$

Die instationäre Diffusion gemäß dem 2. Fickschen Gesetz ist in Abbildung 3.30 dargestellt.

Der Diffusionskoeffizient in Flüssigkeiten berechnet sich nach EINSTEIN [31]:

$$\mathbf{D} = \frac{k \cdot T}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot d} \quad \text{Gl. 3.57}$$

Er hängt neben der Boltzmann-Konstante  $k$  von der Temperatur  $T$ , der dynamischen Viskosität des Fluids  $\eta$  und dem Durchmesser  $d$  der diffundierenden Partikel ab [31].

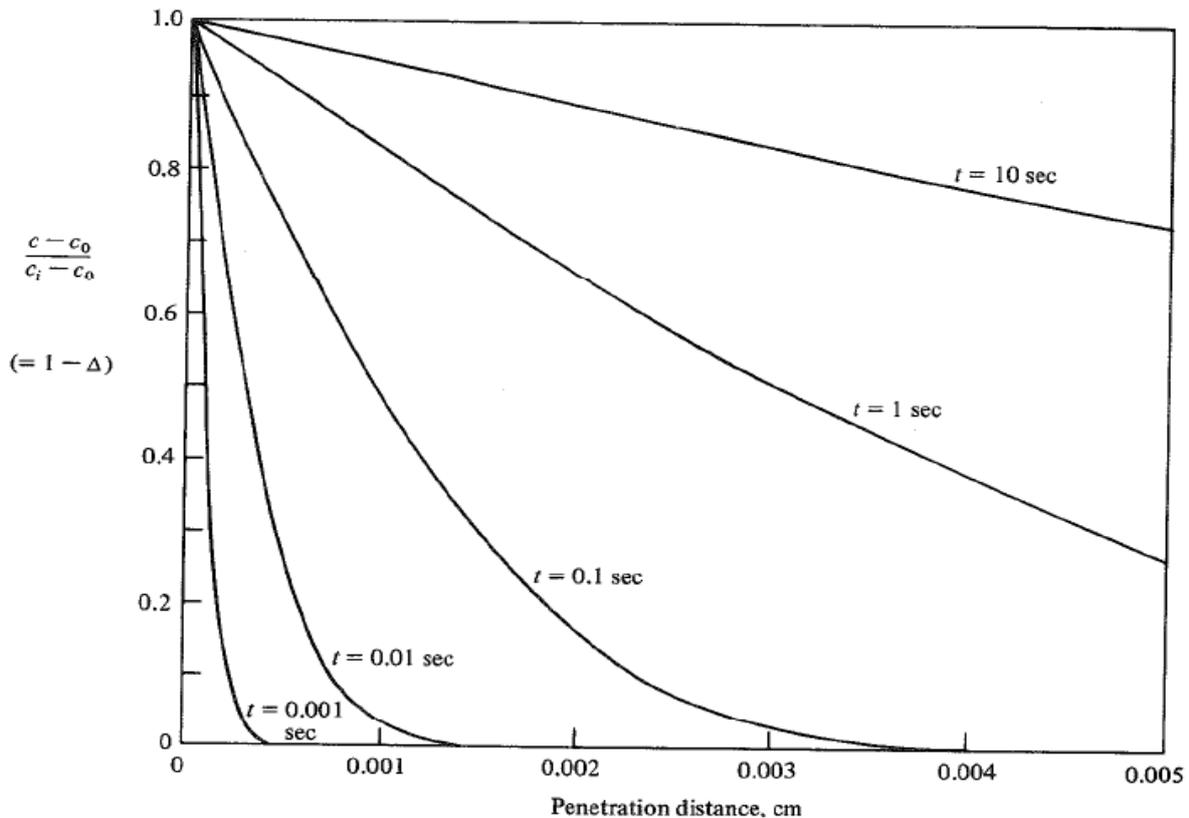


Abbildung 3.30: Diffusion eines gelösten Stoffes in ein infinites Medium [113]. Die angegebenen Zeiten entsprechen einer Diffusion in einer Flüssigkeit mit  $D = 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$

Der Konzentrationsverlauf ändert sich mit der Zeit. Durch den Schmutzbelag (Sättigung) an der Wand ist die Konzentration 1.0 vorhanden, zumindest solange noch ein Belag auf der Oberfläche vorhanden ist. Sie nimmt in kurzem Wandabstand sehr schnell ab und der Großteil des Mediums über der Wand besitzt noch die Konzentration 0. Ohne Strömung kommt es mit fortschreitender Zeit in diesem Beispiel zu einem Konzentrationsausgleich, so dass bei einer Zeit  $t = 10 \text{ s}$  eine fast waagrechte Kurve entsteht. Das 2. Ficksche Gesetz wird zur Bestimmung des Diffusionskoeffizienten der Verschmutzungsmatrix verwendet [51].

### 3.6.2 Der Stoffübergang in die bewegte Reinigungsflüssigkeit

Der Stofftransport kann in Analogie zum Wärmetransport erklärt werden. Wärmetransport ist ein Energietransport zwischen zwei Systemen auf Grund von Temperaturunterschieden. Der Wärmetransport kann durch Wärmeleitung und Wärmestrahlung erfolgen und bei Vorhandensein einer Strömung durch Wärmekonvektion. Der Stofftransport bei der Strömungsreinigung erfolgt ebenfalls durch Diffusion und Konvektion. Zur Berechnung des Stoffübergangs in ein strömendes Fluid müssen neben den Fickschen Gesetzen der Diffusion auch die

Gesetze der viskosen Flüssigkeitsbewegung berücksichtigt werden [108]. Der zwischen einer Rohrwand und dem daran entlang strömenden Fluid übertragene Massenstrom kann in Anlehnung an den Wärmeübergang nach Gleichung 3.58 formuliert werden [11].

$$\dot{m} = A \cdot \beta \cdot \Delta c \quad \text{Gl. 3.58}$$

Hierin bedeuten  $\beta$  den Stoffübergangskoeffizienten,  $A$  die Stoffübertragungsfläche und  $\Delta c$  den Betrag der Konzentrationsdifferenz der diffundierenden Komponente zwischen der Rohrwand (Index W) und dem strömenden Fluid (Index FI).

$$\Delta c = |c_W - c_{FI}| \quad \text{Gl. 3.59}$$

Der Stoffübergangskoeffizient  $\beta$  ist der Quotient aus dem Diffusionskoeffizienten  $D$  und der Dicke der diffusiven Unterschicht  $\delta_{Diff}$ , in welcher die Konzentration von  $c_W$  auf  $c_{FI}$  abfällt.

$$\beta = \frac{D}{\delta_{Diff}} \quad \text{Gl. 3.60}$$

Wird Gleichung 3.60 in Gleichung 3.58 eingesetzt, so wird deutlich, dass diese Beziehung dem Fickschen Gesetz (Gleichung 3.54 und 3.55) entspricht. Lediglich der Konzentrationsgradienten  $\partial c / \partial x$  aus Gleichung 3.55 wird hier als  $\Delta c / \delta_{Diff}$  dargestellt, wobei die diffusive Schichtdicke direkt berechenbar ist.

Bei der verlorenen Strömungsreinigung wird die Konzentration des gelösten Stoffes in dem Fluid  $c_{FI}$  gering gehalten, da die gelösten Stoffe sofort abtransportiert werden. Bei der Reinigung im Kreislauf steigt die Konzentration in der Flüssigkeit mit der Reinigungsdauer an. Die Dicke der diffusen Unterschicht hängt in beiden Fällen von der Strömungsgeschwindigkeit ab.

Aufgrund der Ähnlichkeit von Wärme- und Stofftransport in Flüssigkeiten sind auch die zugrunde liegenden Berechnungsformeln ähnlich. Die dimensionslosen Kennzahlen sind direkt übertragbar.

Die Nusselt-Zahl  $Nu$  ist ein dimensionsloser Wärmeübergangskoeffizient. Hierin bedeuten  $\alpha$  den Wärmeübergangskoeffizienten,  $d$  den Rohrdurchmesser (oder eine charakteristische Länge in anderen Fällen) und  $\lambda_l$  die Wärmeleitfähigkeit eines Stoffes.

$$Nu = \frac{\alpha \cdot d}{\lambda_l} \quad \text{Gl. 3.61}$$

Die Sherwood-Zahl  $Sh$  ist die der Nusselt-Zahl entsprechende dimensionslose Kennzahl des Stoffübergangs. Hierin bedeuten  $\beta$  den Stoffübergangskoeffizienten,  $d$  den Rohrdurchmesser und  $D$  den Diffusionskoeffizienten der diffundierenden Komponente.

$$\mathbf{Sh} = \frac{\beta \cdot \mathbf{d}}{\mathbf{D}} = \frac{\mathbf{d}}{\delta_{\text{Diff}}} \quad \text{Gl. 3.62}$$

Folglich lassen sich in Flüssigkeiten die Gleichungen in der Form  $Nu = f(Re, Pr, \dots)$  zur Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  auch zur Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten  $\beta$  verwenden, wenn  $Nu$  durch  $Sh$  und  $Pr$  durch  $Sc$  ersetzt wird:  $Sh = f(Re, Sc, \dots)$ . Analog zu der Prandtl-Zahl  $Pr$  aus dem Wärmeübergang ist die Schmidt-Zahl  $Sc$  die dimensionslose Kennzahl eines Stoffwert-Verhältnisses aus der kinematische Viskosität  $\nu$  und dem Diffusionskoeffizienten  $D$ .

$$\mathbf{Pr} = \frac{\nu}{\alpha} \quad \text{Gl. 3.63}$$

$$\mathbf{Sc} = \frac{\nu}{\mathbf{D}} \quad \text{Gl. 3.64}$$

Da  $Sh = f(Re, Sc)$  hängt der Stoffübergang von der Strömungsgeschwindigkeit bzw. der Reynoldszahl an dem überströmten Bereich ab. Je höher die Reynoldszahl der Strömung ist, desto kleiner ist die diffusive Grenzschicht und schneller erfolgt der Stoffübergang.

Beispiele für die Berechnung des Stoffübergangs während der Reinigung sind im Detail von HOFMANN [51] gegeben und werden deswegen an dieser Stelle nicht näher erläutert.

## 4 Material und Methoden

### 4.1 Die untersuchten Werkstoffoberflächen

Im Laufe dieser Arbeit wurden verschiedene Oberflächen eingesetzt, die sich in ihrem Material und/oder ihrer Rauheit bzw. Rauheitsstruktur unterscheiden.

Für die Messungen in der Strömungszelle wurden Oberflächenproben als flache Plättchen verwendet. Für die Untersuchungen nach der standardisierten Testmethode der European Hygienic Engineering and Design Group (EHEDG) war dies nicht möglich, da die Testoberflächen in ein Rohrsystem einer modellierten CIP-Reinigungsanlage eingegliedert werden. Hierfür wurden 0,5 m lange DN 50 Rohre, versehen mit Milchrohrverschraubungen, eingesetzt.

Das meist untersuchte Oberflächenmaterial ist Edelstahl, da dieser das Standard-Material im Maschinenbau der Lebensmittel- und Pharmaindustrie darstellt. Zudem wurden andere relevante Oberflächenmaterialien getestet, die im Folgenden benannt werden. Für die wissenschaftliche Untersuchung der einzelnen Oberflächenparameter ist es grundlegend, bei der Variation einer Einflussgröße alle anderen möglichst konstant zu halten. Aus diesem Grund wurden zusätzlich Edelstahloberflächen mit unterschiedlichen Beschichtungen gecoatet, um ein anderes Oberflächenmaterial mit ähnlicher Topographie untersuchen zu können.

Die Topographien dieser Oberflächen sind dennoch in sich inhomogen und anisotrop. Es besteht die Vermutung, dass die Kontaktbedingungen stark von dem Ort auf der Oberfläche und dem sich dort befindenden Oberflächenprofil abhängt. Deshalb wurden für die Messungen im Strömungskanal Oberflächen mit exakten Strukturen hergestellt, um von bekannten Kontaktbedingungen ausgehen zu können.

#### 4.1.1 Edelstahloberflächen

Für die Messungen in der Strömungszelle (Plättchen) und in der EHEDG-Anlage (Rohre) wurden Oberflächenproben aus Edelstahl (CIII) DIN 1.4404, nach AISI-Bezeichnung 316 L, verwendet. Dieser Edelstahl wurde in unbehandeltem Zustand (kaltgewalzt), sowie nach verschiedenen Nachbearbeitungen verwendet, wodurch unterschiedliche Rauheiten durch Schleifen mit unterschiedlichen Korngrößen und/oder Elektropolieren erzeugt wurden. Die Korngröße K gibt an, mit welchem Schleifpapier die Oberfläche geschliffen wurde. Die Zahl hinter dem K (z.B. K 400) gibt an, wie viele Maschen das Rüttelsieb bei definierter Fläche besaß, durch die das

Schleifmittel gesiebt wurde. Je niedriger die Zahl nach dem K, desto rauer ist die Oberfläche. Tabelle 4.1 gibt einen Überblick über die im Strömungskanal verwendeten Edelstahloberflächen und deren Rauheiten  $R_a$ , welche von der Firma Poligrat (München) zur Verfügung gestellt wurden.

**Tabelle 4.1: Mit dem Pertometer gemessene  $R_a$  – Werte der verwendeten Edelstahloberflächen**

Oberflächenbezeichnung	Oberflächenzustand	$R_a$ [ $\mu\text{m}$ ]
K 120	geschliffen	1,84
K 240	geschliffen + elektropoliert	0,34
K 240	geschliffen	0,96
K 400	geschliffen + elektropoliert	0,20
K 400	geschliffen	0,57
C III Original	elektropoliert	0,12
C III Original	kaltgewalzt	0,23

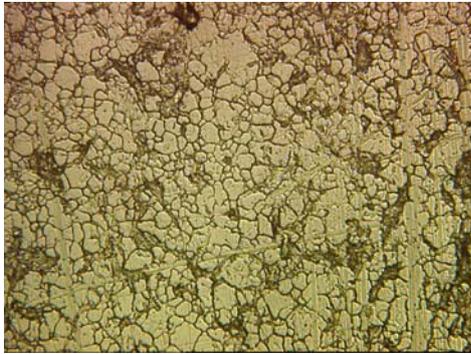
Tabelle 4.2 zeigt die Zustände der Innenoberflächen der DN 50 Rohre, nachbearbeitet von der Firma GEA Tuchenhagen (Bopfingen), welche im EHEDG-Reinigungsstand zum Einsatz kamen. An die Rohre wurden Milchrohrverschraubungen angeschweißt, um sie in das Leitungssystem eingliedern zu können.

**Tabelle 4.2: Mit dem Pertometer gemessene  $R_a$  – Werte der Innenoberflächen der verwendeten Edelstahlrohre**

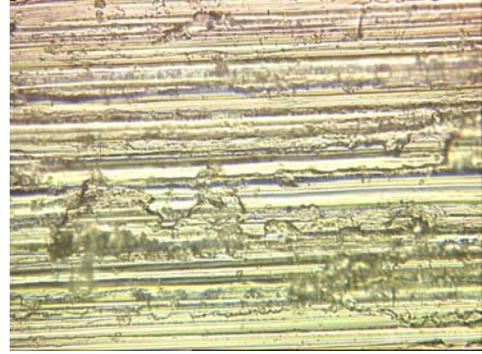
Oberflächenrauheit $R_a$ [ $\mu\text{m}$ ]	Oberflächenzustand
0,13	geschliffen + elektropoliert
0,17	geschliffen
0,28	kaltgewalzt
0,30	geschliffen + elektropoliert
0,40	geschliffen
0,40	geschliffen + elektropoliert
0,60	geschliffen + elektropoliert
0,90	geschliffen
1,50	geschliffen
2,50	geschliffen

Die Oberflächenenergie von Edelstahl hängt nicht signifikant von dem Bearbeitungszustand ab. Auch zwischen unbehandeltem und elektropoliertem

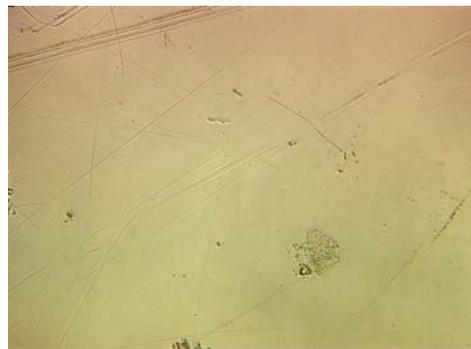
Edelstahl wurde kein signifikanter Unterschied bezüglich der Oberflächenenergie festgestellt. Der Wert liegt bei den verwendeten Edelstählen in etwa bei  $\gamma = 35 \text{ mN/m}$ . Abbildung 4.1 zeigt die Zustände einiger Edelstahloberflächen vor und nach der Bearbeitung.



Kaltgewalzter Edelstahl ( $R_a = 0,23 \mu\text{m}$ )



Edelstahl K 120 ( $R_a = 1,84 \mu\text{m}$ )



Kaltgewalzter Edelstahl elektroliert  
( $R_a = 0,12 \mu\text{m}$ )



Edelstahl K 400 ( $R_a = 0,57 \mu\text{m}$ )

**Abbildung 4.1: mikroskopische Aufnahmen der Bearbeitungszustände ausgewählter Edelstahloberflächen**

#### 4.1.2 Weitere relevante Oberflächen der Lebensmittelindustrie

Neben Edelstahl wurden Oberflächen aus PTFE (Polytetrafluorethen) der Firma Dyneon GmbH (Burgkirchen), und aus Emaille der Firma Dücker GmbH (Laufach), verwendet. PTFE, häufig mit dem Handelsnamen „Teflon“ der Firma DuPont in Verbindung gebracht, gilt als leicht reinigbare Oberfläche und wird besonders im Armaturen-Bereich in der Lebensmittelindustrie häufig verwendet. Emaille ist im Trinkwasserbereich, aber auch in der Pharma- und Chemieindustrie ein wichtiger Werkstoff für Produktionsanlagen. Die Oberflächenrauheiten ( $R_a$ ) und –energien ( $\gamma$ ) sind in Tabelle 4.3 angegeben:

Tabelle 4.3: Rauheiten und Oberflächenenergien der weiteren Materialien neben Edelstahl

Oberfläche	R <sub>a</sub> [µm]	γ [mN/m]
PTFE TFM 1600	0,38	15,6
Emaile	0,02	64,5

PTFE- und Emaile-Oberflächen (Abbildung 4.2) wurden in der Strömungszelle in den Versuchen der Einzelpartikelablösung untersucht

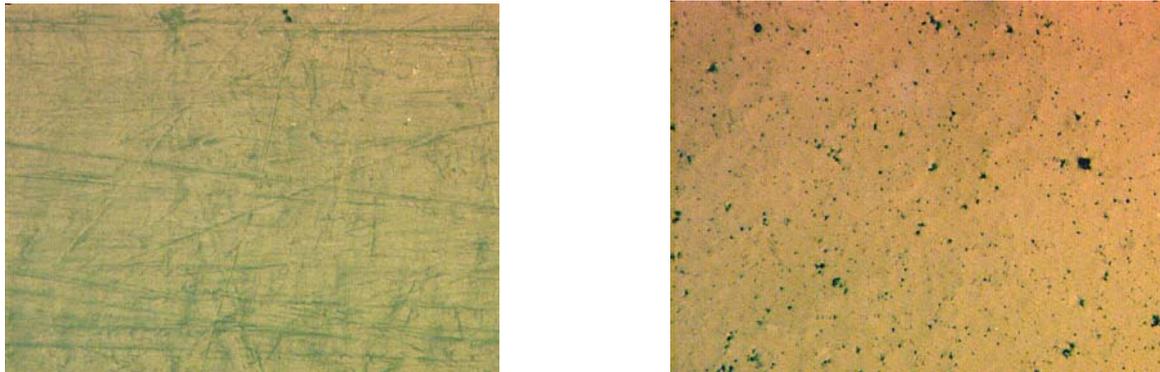


Abbildung 4.2: Oberflächenbeschaffenheit der PTFE- (links) und der Emaille-Oberflächen (rechts)

Da durch den Einsatz der Emailleoberflächen nicht nur die Oberflächenenergie alleine variiert wird, sondern sich zusätzlich auch die Rauheit erheblich ändert, wurden die Reinigbarkeitsuntersuchungen neben den oben aufgeführten Materialien auch mit beschichteten Edelstahloberflächen durchgeführt. Dadurch wurde gewährleistet, dass die Oberflächen mit veränderter Oberflächenenergie bei nahezu gleicher Rauheit getestet werden können. Die Trägeroberflächen mit den original R<sub>a</sub>-Werten, die verschiedenen Beschichtungen sowie die daraus entstandenen Oberflächenrauheiten (R<sub>a</sub>) und –energien (γ) der Edelstahlbeschichtungen sind in Tabelle 4.4 aufgeführt.

Tabelle 4.4: R<sub>a</sub>-Werte und Oberflächenenergien der Ausgangsoberfläche und der beschichteten Edeltähle.

Trägermaterial	R <sub>a</sub> [µm]	Beschichtung	R <sub>a</sub> [µm]	γ [mN/m]
K 120	1,84	SiO <sub>x</sub> - Coating/Nanofinish	2,03	18,4
K 240	0,96	SiO <sub>x</sub> - Coating/Nanofinish	0,79	19,6
K 400	0,57	SiO <sub>x</sub> - Coating/Nanofinish	0,46	21,8
K 120	1,86	SiO <sub>2</sub> - Coating	2,08	66,9
K 240	0,96	SiO <sub>2</sub> - Coating	0,94	62,0
K 400	0,57	SiO <sub>2</sub> - Coating	0,58	69,1
K 240	0,96	DLC (a:CH- Coating)	1,08	57,7

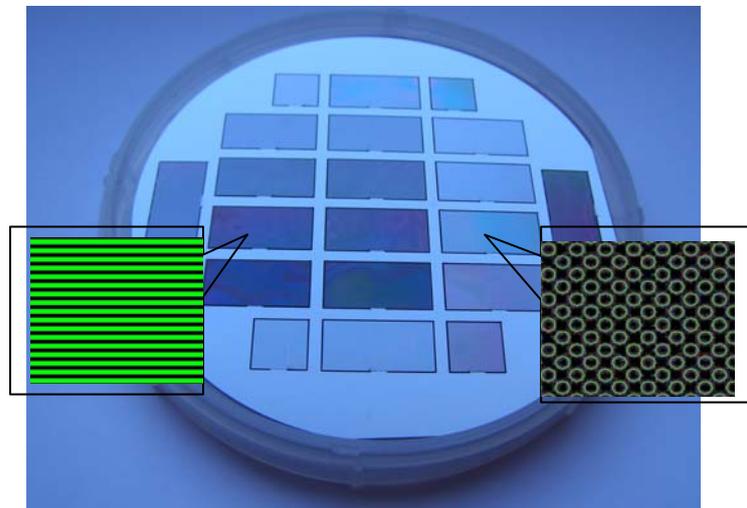
Die Abkürzung DLC steht für „Diamond Like Carbon“, die Edelstahloberflächen sind mit einer Schicht aus amorphem Kohlenstoff (a:CH) überzogen. Diese wurden ebenso wie die  $\text{SiO}_2$ -Beschichtungen von der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (Berlin), hergestellt. Die Nanofinish-Beschichtung ist eine  $\text{SiO}_x$ -Beschichtung ( $x = 2 - 3$ ) nach dem HMDSO- Verfahren (Hexamethyldisiloxan), hergestellt von der Firma Starnberger Beschichtungen (Starnberg).

Strenggenommen handelt es sich bei den Emaille-Oberflächen auch um Beschichtungen, welche auf die Oberflächen eines Grundmaterials (Plättchen oder Rohre) aufgebracht werden. Da die sich durch die Beschichtung aber sowohl die Rauheit als auch die Oberflächenenergie deutlich ändert, wird es in dieser Arbeit wie ein Vollmaterial behandelt.

#### 4.1.3 Herstellung speziell strukturierter Oberflächen

Um Oberflächen mit genau definierten Profilen bzw. Rauheitsstrukturen zu besitzen, wurden diese im lithographischen Ätzverfahren von der Firma Bessey (Berlin), hergestellt.

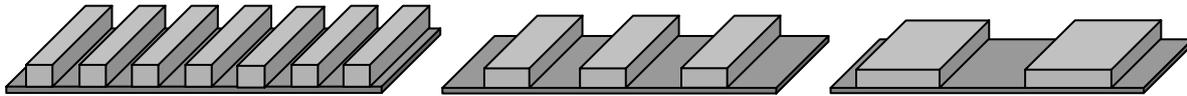
Als Trägermaterial wurden Silizium-Wafer eingesetzt. Zwei verschiedene Rauheitsstrukturen wurden mit unterschiedlichen lateralen Abmessungen bei einer konstanten Ätz-Tiefe von  $1,6 \mu\text{m}$  hergestellt (Abbildung 4.3).



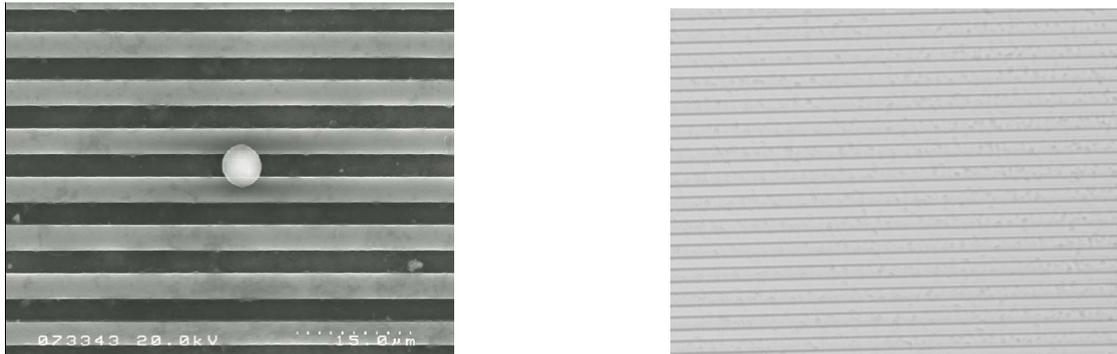
**Abbildung 4.3: Lithographische Herstellung von Gräben- und Säulen-Strukturen auf einem Silizium-Wafer**

Ausgehend von der sehr glatten Referenzoberfläche wurden für die eine Rauheitsstruktur Gräben unterschiedlicher Breiten senkrecht zur späteren Strömungsrichtung in das Silizium geätzt. Es wurden unterschiedliche Plättchen mit

je 1,6  $\mu\text{m}$ , 3,2  $\mu\text{m}$  und 6,4  $\mu\text{m}$  breiten Gräben und Stegen hergestellt. Dies ist schematisch in Abbildung 4.4 dargestellt und in als REM-Aufnahme zu sehen.

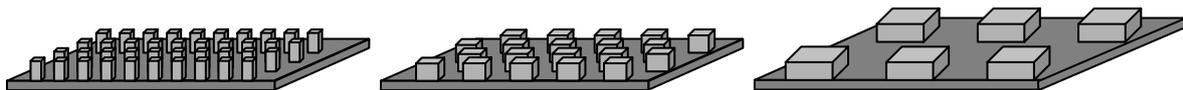


**Abbildung 4.4:** Schematische Darstellung der unterschiedlich breiten Graben-Strukturen (v.l.n.r.: 1,6  $\mu\text{m}$  breit, 3,2  $\mu\text{m}$  breit, 6,4  $\mu\text{m}$  breit)

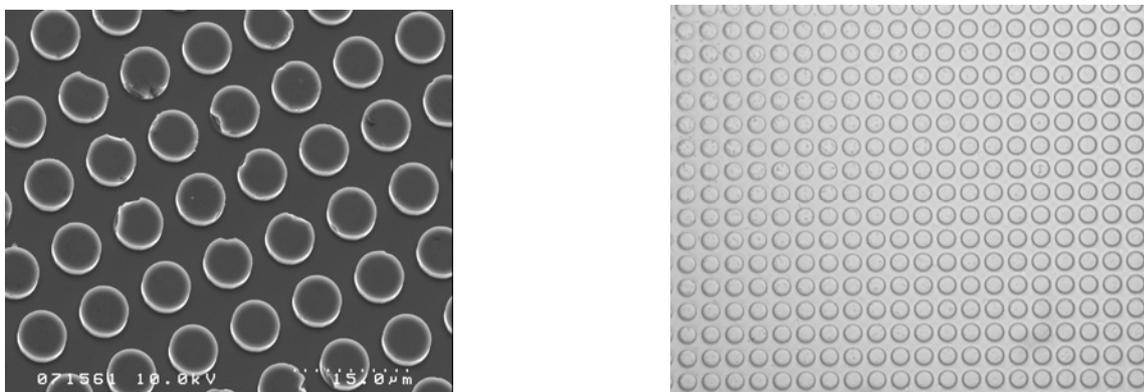


**Abbildung 4.5:** Links: vergrößerter Ausschnitt (REM-Aufnahme) einer 3,2  $\mu\text{m}$  Graben-Oberfläche mit einem aufliegendem 5,2  $\mu\text{m}$  Polystyrolpartikel darauf (Schwarz: Graben, Grau: Steg); Rechts: Aufnahme einer Oberfläche mit Graben-Struktur unter dem Lichtmikroskop

Für die säulenartige Rauheit wurden ebenfalls unterschiedliche Plättchen mit Strukturen von je 1,6  $\mu\text{m}$ , 3,2  $\mu\text{m}$  und 6,4  $\mu\text{m}$  breiten Säulen in den Wafer geätzt. Dies ist in den nachfolgenden Abbildungen schematisch und als Originalaufnahme dargestellt.



**Abbildung 4.6:** Schematische Darstellung der unterschiedlich breiten Säulen-Strukturen (v.l.n.r.: 1,6  $\mu\text{m}$  breit, 3,2  $\mu\text{m}$  breit, 6,4  $\mu\text{m}$  breit)



**Abbildung 4.7:** Links: vergrößerter Ausschnitt (REM-Aufnahme) einer 6,4  $\mu\text{m}$  Säulen-Oberfläche; Rechts: Aufnahme einer Oberfläche mit Säulen-Struktur unter dem Lichtmikroskop

Die Besonderheit dieser Oberflächen ist, dass bei einer theoretischen Berechnung der Rauheit sich aufgrund der konstanten Ätz-Tiefen für jede strukturierte Oberfläche derselbe  $R_a$ -Wert ergeben würde. Würde der  $R_a$ -Wert nach DIN 4768 gemessen werden, so würde sich aufgrund der Geometrie der Tastspitze für die  $6,4\ \mu\text{m}$  breite Struktur der höchste  $R_a$ -Wert ergeben, da hier die Ätz-Tiefe voll erfasst werden kann (Abbildung 4.8).

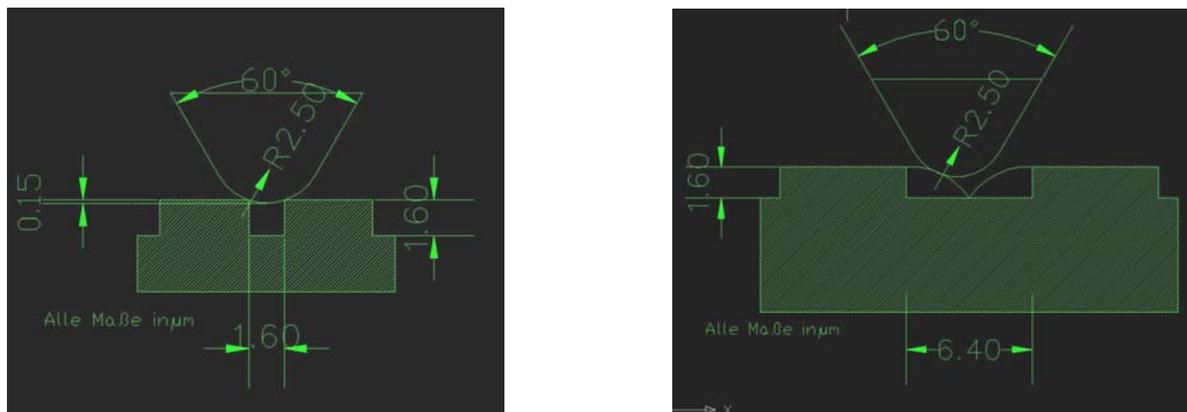


Abbildung 4.8: Darstellung der Tastspitze auf einer Oberfläche mit  $1,6\ \mu\text{m}$  Struktur (links) und  $6,4\ \mu\text{m}$  Struktur (rechts)

## 4.2 Die verwendeten Verschmutzungsarten

Die Art der Verschmutzung sowie deren geometrische Eigenschaften können die Reinigung beeinflussen. Aus diesem Grund ist es wichtig, die unendliche Vielzahl möglicher Verschmutzungsarten in Gruppen einzuteilen, relevante Kontaminationsfälle herauszufiltern und diese so repräsentativ wie möglich durch reproduzierbare Verschmutzungen darzustellen.

Von der geometrischen Größenordnung aus gesehen, können Verschmutzungen die Bandbreite von flächendeckender Natur bis hin zur kleinsten Partikel abdecken, weshalb diese beiden Grenzfälle berücksichtigt werden. Die Zusammensetzung der Verunreinigung hat Einfluss auf die Art und Weise, wie diese abgereinigt wird. Daher wird sowohl ein Schmutzfilm verwendet, der in der Reinigungslösung löslich ist (diffusive Auflösung), als auch ein kohäsiver Film, der während der Reinigung von dem Fluid in der Zusammensetzung nicht verändert wird und nur durch die Wandschubspannung abgelöst werden kann.

## 4.2.1 Verschmutzung mit partikulären Verunreinigungsarten

### Hefezellen

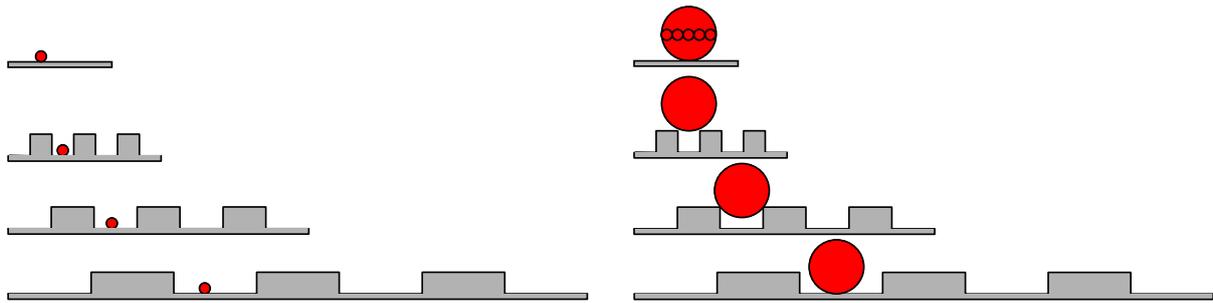
Bei sämtlichen Versuchen mit Hefezellen wurde die Linco Backhefe (*Saccharomyces cerevisiae*) der Lindenmeyer GmbH & Co.KG (Heilbronn) verwendet. Die Hefen sind einzellig und haben einen mittleren Durchmesser von 5,45  $\mu\text{m}$ . Sie bestehen zu 75 % aus Wasser. Die Trockensubstanz setzt sich, je nach physiologischem Zustand der Zelle, aus Stickstoffverbindungen, Kohlenhydraten, Fett, Mineralstoffen und Spuren von Vitaminen zusammen. Die Dichte der Hefezellen beträgt 1071  $\text{kg}/\text{m}^3$ . Genauere Details zu dem Aufbau der Hefezelle können der Literatur entnommen werden [107].

Es wurden 2 g der Hefe in Leitungswasser in einem 250 ml - Erlenmeyerkolben suspendiert und über 48 h auf die Oberflächen sedimentiert. Nach dieser Zeit wurde der lockere Hefeschlamm auf den Oberflächenproben durch einmaliges Eintauchen in reines Leitungswasser abgewaschen, so dass nur die haftenden Zellen auf der Oberfläche zurück blieben.

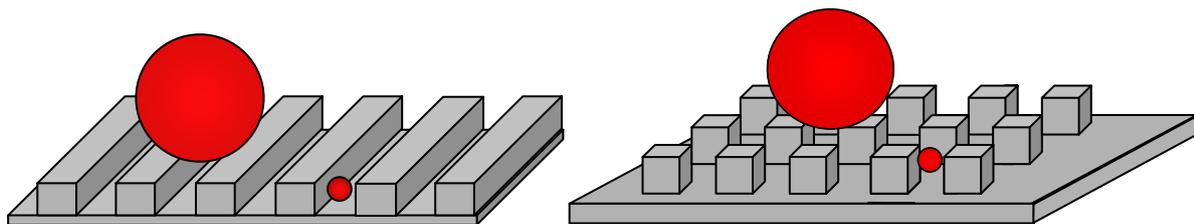
### Polystyrolpartikel

Für die Versuche mit nicht lebenden Organismen wurden Polystyrolpartikel (PS-Green- Fi36) der Firma Microparticles GmbH (Berlin) verwendet. Der Durchmesser betrug 1,16  $\mu\text{m}$  ( $\pm 0,05 \mu\text{m}$ ) für die „kleinen“ und 5,27  $\mu\text{m}$  ( $\pm 0,08 \mu\text{m}$ ) für die „großen“ Partikeln, die Dichte beträgt 1050  $\text{kg}/\text{m}^3$ . In das Polystyrol ist ein grün fluoreszierender Farbstoff (FITC-Markierung) eingebunden, so dass die Partikeln auf den Oberflächen, welche in die Sedimentationsgläser eingelegt gewesen sind, direkt unter dem Fluoreszenzmikroskop mittels der automatischen Bildanalyse ausgezählt werden konnten.

Die Partikelgrößen wurden mit den Strukturierten Oberflächen so abgestimmt, dass aus der Verwendung der Polystyrolpartikeln mit Durchmessern von 1,16  $\mu\text{m}$  und 5,27  $\mu\text{m}$  unterschiedliche Haftfälle resultieren. Während die „kleinen“ Polystyrolpartikeln in alle Strukturen hinein passen, liegen die „großen“ Polystyrolpartikeln nur bei den 6,4  $\mu\text{m}$  Strukturen zwischen den Erhöhungen (Abbildung 4.9, Abbildung 4.10).



**Abbildung 4.9: 2-D-Ansicht der Kontaktfälle, die aus der Kombinationen der Polystyrolpartikeln mit den strukturierten Oberflächen entstehen**



**Abbildung 4.10: Veranschaulichung der Lage der Polystyrolpartikeln auf den 1,16 µm Oberflächenstrukturen**

Die Polystyrolpartikeln wurden in wässriger Suspension auf die Oberflächen in einem Zeitraum von 24 h aufsedimentiert. Dazu wurden von den Partikeln mit einem Durchmesser von 1,16 µm pro Versuch 100 µl des Polystyrolkonzentrats ( $c_0 = 25$  mg/ml) auf 250 ml entionisiertes Wasser gegeben und von den Partikeln mit einem Durchmesser von 5,27 µm sind 40 µl des Polystyrolkonzentrats ( $c_0 = 25$  mg/ml) zu 250 ml entionisiertem Wasser hinzugefügt worden.

### Escherichia Coli Bakterien

Bei dem verwendeten E.Coli-Stamm handelt es sich um eine spezielle transgene Variante des Lehrstuhls für Mikrobiologie der TU-München (Weihenstephan), welcher eine Gensequenz eingebaut wurde. Durch diesen Eingriff ist das Bakterium in der Lage, ein Protein zu produzieren, welches bei entsprechender Anregung fluoresziert. Bei einer Länge von ca. 3 µm und einem Durchmesser von 1,5 µm war dies der Grund, warum dieser E.Coli-Stamm für die Untersuchungen interessant gewesen ist. Eine genaue Untersuchung der Partikelgrößenverteilung ist aufgrund der Sicherheitsanforderungen an das Arbeiten mit transgenen genveränderten Organismen (GVOs) nicht möglich gewesen.

Aufgrund der Begeißelung und der Beweglichkeit der E.Coli-Bakterien war es nicht möglich, die Organismen durch reine Sedimentation auf der Oberfläche anhaften zu lassen. Nach Ruhezeiten von bis zu drei Tagen waren die Bakterien auf der Oberfläche beweglich. Um das Messen der E.Coli-Ablösung zu ermöglichen, wurden

die Bakterien nach einer Sedimentationsphase von einem Tag durch Aufbewahrung an Luft für eine Stunde auf der Werkstoffoberfläche angetrocknet und anschließend für die Versuche verwendet.

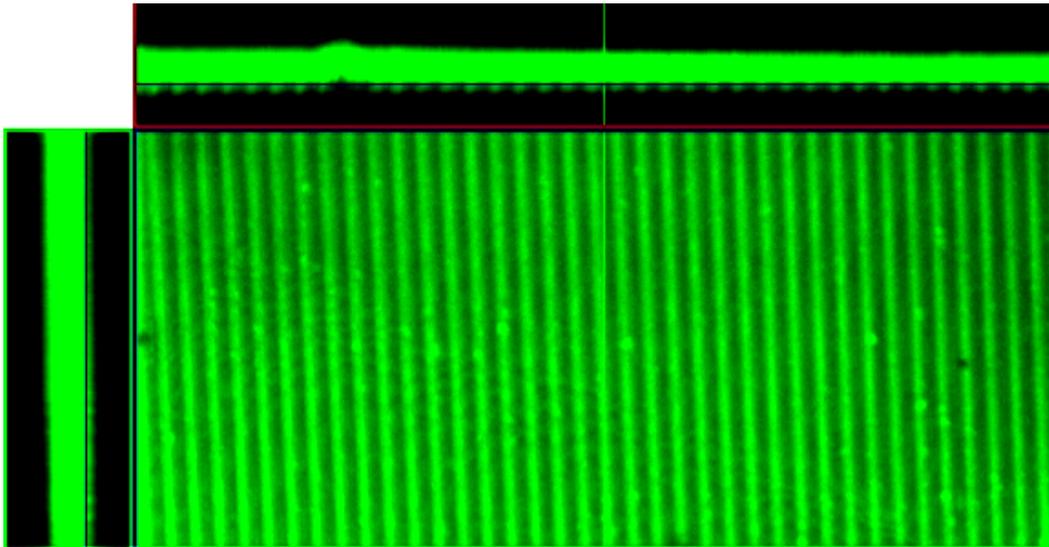
#### **4.2.2 Die Herstellung von Schmutzfilmen**

Ein wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit lag in der Aufgabe, eine Zusammensetzung und Aufbringungsmethode zu entwickeln, um reproduzierbare Schmutzfilme herzustellen. Während das Vorgehen für die Versuche nach dem Standard des EHEDG-Test (diffusive Auflösung eines Schmutzfilmes) bekannt ist, wurde dieses für die kohäsiven Schmutzfilme in Zusammenarbeit mit dem Institut für Wasserwirtschaft, IWW, Mülheim a.d. Ruhr, entwickelt.

##### Kohäsiver Schmutzfilm

Es bestand die Herausforderung, einen kohäsiven Modell-Schmutzfilm reproduzierbar herzustellen, der in dem vorgegebenen Spektrum der Strömungsgeschwindigkeiten abgelöst werden kann. Außerdem sollte dieser in seinen Mengen bzw. seiner Fläche quantifizierbar sein und seine Eigenschaften in dem verwendeten Zeitraum nicht verändert. Dies wurde durch die Verwendung eines Hydrokolloids erfüllt. Das entstehende Gel kann in unterschiedlichen Konzentrationen hergestellt werden, wodurch die Kohäsion des Films eingestellt werden kann. In die Gelmatrix können die für die Aufbringung und Auswertung wichtigen Zusätze eingelagert werden und in geringen Zeiträumen unter 10 Minuten kommt es bei Kontakt mit kaltem Leitungswasser (17 °C) zu keiner signifikanten Veränderung des Gels.

Es wurden 0,85 g Agarose (Fa. Sigma) auf 100 ml Leitungswasser gegeben und nach dem Aufkochen in der Mikrowelle auf 60 °C im Wasserbad temperiert und konstant gehalten. Um den Schmutzfilm mittels Fluoreszenzmikroskopie nachweisen bzw. quantifizieren zu können, wurden dem Gel 3 ml Fluoreszin (0,3 %, Fa. Sigma) beigemischt. Unter Beigabe von 20 µl des Tensids RBS 35 (Fa. Roth) konnte die Suspension bei 60 °C gleichmäßig mittels Spin-Coating auf die Versuchsoberfläche aufgebracht werden. Die Werkstoffoberfläche wird durch ein Vakuum auf einer Rotationsscheibe bei 1.000 U/min angesaugt und fixiert. 1 ml des bei 60 °C flüssigen Agarosegels wurde auf die rotierende Oberfläche gegeben, wodurch das Gel verteilt wurde und überschüssiges Material abgeschleudert worden ist. Bilder unter dem konfokalen Laser-Scanning-Mikroskop (CLSM) zeigen, dass eine gleichmäßig dicke Schicht von ca. 20 µm entsteht, welche die Oberfläche komplett benetzt (Abbildung 4.11).



**Abbildung 4.11: Aufnahme des kohäsiven Agarosefilms nach dem Aufbringen per Spin-Coating in der Ebene der Gräben (siehe blaue Linie in Seitenansicht oben)**

#### Schmutzfilm für die diffusive Reinigung (Auflösung)

Diese Verschmutzungsmatrix besteht aus einer Sauermilch, welcher Sporen des Bakterienstammes *Geobacillus stearothermophilus* var. *calidolactis* in einer Konzentration von  $10^5$  Sporen pro Milliliter beigegeben werden. Die optimale Wachstumstemperatur dieses Stammes liegt zwischen  $50\text{ °C}$  und  $65\text{ °C}$ , womit *Geobacillus stearothermophilus* zu den thermophilen Organismen zählt und die Zellen bei Temperaturen unter  $30\text{ °C}$  nicht mehr wachsen. Die Größe der kugelförmigen Sporen ist mit einem Durchmesser von  $0,8\text{ }\mu\text{m}$  angegeben.

Da es sich wie angesprochen um die standardisierte Verschmutzung des EHEDG-Tests handelt, wird auf die genaue Beschreibung der Herstellung verzichtet, welche der Literatur jedoch entnommen werden kann [30].

Das zu reinigende Rohr wird mit der Suspension komplett befüllt und nach einer Kontaktzeit von einer Minute wieder entleert. Bei allen Rohren ergab sich dadurch eine komplett belegte Innenoberfläche, deren Verschmutzung über 1 h antrocknete, indem Sterilluft mit Umgebungstemperatur ( $20\text{ °C}$ ) durch das Rohr geleitet wurde.



**Abbildung 4.12: Aufnahme der komplett verschmutzten Rohr-Innenoberflächen vor (links) und nach (rechts) dem Trocknen**

### 4.3 Reinigung in der Strömungszelle

Die rein mechanische Ablösung der Modell-Verunreinigungen (Einzelpartikel, kohäsiver Schmutzfilm) erfolgt in einer Strömungszelle durch die hydrodynamische Kraft des Fluids. In den Arbeiten von WEIGL [125] wurde die Eignung eines derartigen Versuchsaufbaus zur reproduzierbaren Messung von Trennkräften mit einem „großen“ Strömungskanal (Technikumsmaßstab) bereits gezeigt.

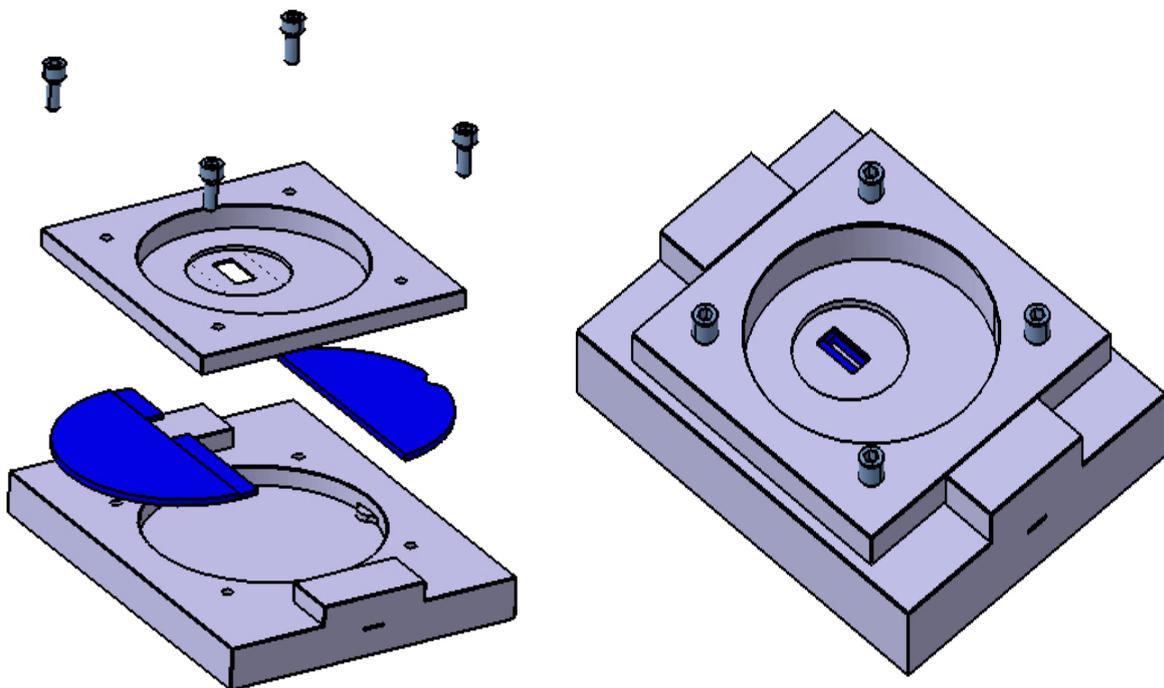
Gegenüber dem Strömungskanal aus vorangegangenen Arbeiten, welcher Abmessungen im Technikumsmaßstab aufweist, ist bei dem neu konzipierten Mikro-Strömungskanal eine Strömungsablösung im Labormaßstab in einem größeren Strömungsgeschwindigkeits-Spektrum möglich. Weitere Gründe zur Realisierung der Strömungszelle bzw. des Mikrokanals, der ein Scale-down eines „großen“ Strömungskanals darstellt, sind ein geringes Vorlagevolumens an Reinigungswasser bzw. –mittel und die Möglichkeit der Inlinebeobachtung während der Reinigung.

Der Vorteil der Inlinebeobachtung bedeutet, dass die Ablösung beispielsweise von Partikeln von einer Oberfläche per Mikroskop zeitgleich verfolgt werden kann und nicht nur Vorher-Nachher-Bilder verglichen, sondern mögliche Ablöseverhalten identifiziert werden können. Diese Möglichkeit ist durch ein Sichtfenster realisiert worden, welches in einer Nut in dem Kanaldeckel eingesetzt ist.

Zusätzlich können in dem Mikrokanal die Einflüsse verschiedener Reinigungsparameter getestet werden. Der Vorteil des Mikrokanals gegenüber dem „großen“ Kanal besteht darin, dass aufgrund der kleineren Geometrie nicht über 1 m<sup>3</sup> Reinigungsmittel vorgelegt werden muss, sondern nur wenige Liter. Es werden Anschaffungs- und Entsorgungskosten der Reinigungslösung gespart und die Umweltbelastung gering gehalten.

### 4.3.1 Der Aufbau der Strömungszelle

Ein wichtiges Kriterium bei der Auslegung und Konzeption der Strömungszelle war, dass Strömungsgeschwindigkeiten bis 5 m/s bei einem Maximaldruck von 2 bar erreicht werden. Ebenso sollten möglichst wenig Unterbrechungen der Kanalwände entstehen, die Zelle sollte leicht herstellbar und zu bedienen sein und eine ausreichende Stabilität gegenüber den auftretenden Drücken gewährleisten. Abbildung 4.13 zeigt die Konstruktion aus einem Gehäuse, zwei kanalbegrenzenden Platten und dem Deckel mit Sichtfenster, welche durch vier Schrauben zusammengefasst werden.



**Abbildung 4.13: Schematische Darstellung der Strömungszelle**

Der Bereich, in welchem das Reinigungsmedium fließt, wird durch die zwei Kanalplatten und den Deckel auf eine Querschnittsfläche von 1 mm Höhe und 10 mm Breite begrenzt. In die eine Schale ist eine Aussparung eingefräst, in welche unterschiedliche Werkstoffoberflächen (10 mm Breite, 20 mm Länge) eingelegt werden können, so dass diese ein Teil des Bodens des durchströmten Bereichs darstellen (Abbildung 4.14).

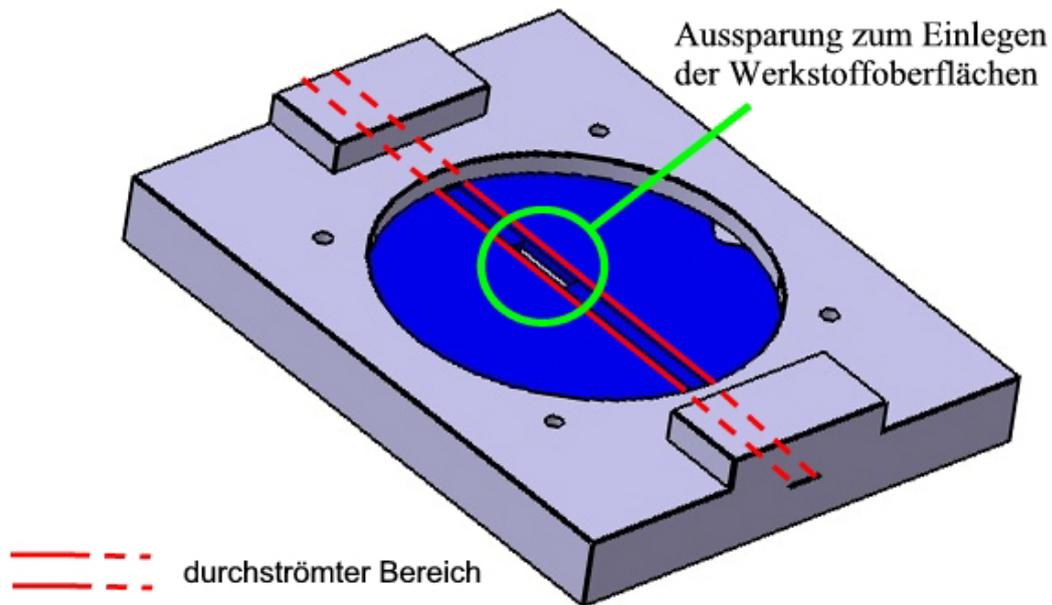


Abbildung 4.14: Strömungszelle ohne Deckel zur Darstellung des durchströmten Bereichs

Da der Querschnitt des durchströmten Bereichs der Zelle rechteckig ist, die Wasserversorgung des Kanals jedoch über kreisrunde Schläuche erfolgt, ist ein Übergang der Querschnitte notwendig. Um Verwirbelungen zu vermeiden, sollte dieser möglichst sanft erfolgen. Als Ein- und Auslauf der Messzelle wurden dazu Düsen aus Epoxydharz gegossen, die den Übergang von einem rechteckigen Querschnitt zu einem kreisförmigen (und umgekehrt) ermöglichen und mittels Schnellverschlüssen an die zu- und abführende Wasserleitung angeschlossen werden können (Abbildung 4.15).

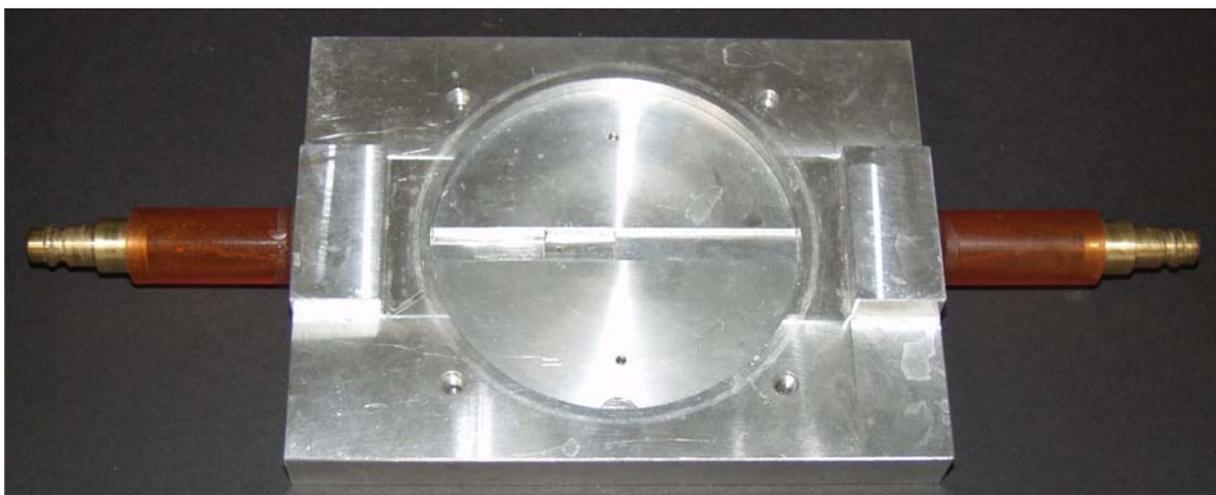


Abbildung 4.15: Gehäuse und Kanal-Platten der Strömungszelle mit Zustromdüsen (ohne Deckel)

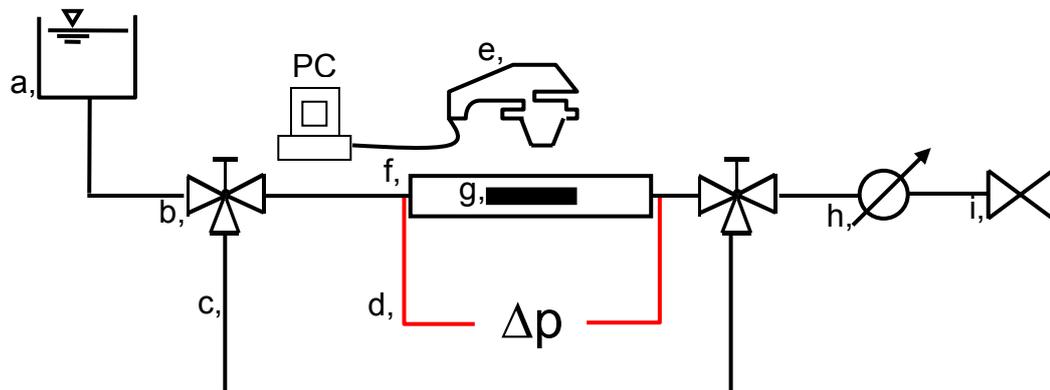
Die technischen Zeichnungen der Strömungszelle sind dem Anhang dieser Arbeit zu entnehmen.

### 4.3.2 Durchführung der Reinigungsversuche

Die Messapparatur kann je nach gefordertem Volumenstrom auf zwei unterschiedliche Art und Weise mit Wasser bzw. Reinigungslösung versorgt werden. Bei hohen Volumenströmen ist darauf zu achten, dass kein zu hoher Druck die Zelle beschädigt. Bei niedrigen Volumenströmen wirken sich Schwankungen besonders stark auf das Ergebnis aus.

Für die Versuche mit variiertem Reinigungsflüssigkeit und bei Versuchen mit niedriger Strömungsgeschwindigkeit strömt das Fluid aus einem Vorlagebehälter aus 2 m Höhe (konstanter Wasserspiegel,  $p = 0,2 \text{ bar}$ ) durch die Messanordnung. Es werden damit Geschwindigkeiten bis  $1 \text{ m/s}$  erreicht. Bei Versuchen mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten wird die Versuchsanordnung an die städtische Wasserleitung angeschlossen. Aus der Wasserleitung (ca.  $6 \text{ bar}$ ) strömt das Leitungswasser durch einen Druckregler, bevor die Messzelle erreicht wird. Der Druck wird auf  $2 \text{ bar}$  verringert, damit keine Druckschwankungen im Wassernetz die Versuche verfälschen und die Zelle bersten lassen. Dies ermöglicht Strömungsgeschwindigkeiten bis  $5,3 \text{ m/s}$ .

Die Strömungszelle kann durch einen Bypass über zwei 3-Wege-Kugelhähne umgangen werden, um das Fluid während des Einstellens des gewünschten Volumenstroms nicht durch die Messzelle strömen zu lassen. Nach der Messzelle bzw. Bypass strömt das Fluid durch den Durchflussmesser, welcher neben dem aktuellen Volumenstrom auch die Fluidtemperatur angibt. Über das Regulierventil am Ende der Messstrecke wird der Volumenstrom eingestellt (Abbildung 4.16).



**Abbildung 4.16:** Schema der Versuchsanordnung (a, Vorlagebehälter oder Wasseranschluss inkl. Druckregler; b, 3-Wege-Kugelhahn; c, Bypass; d, Differenzdruckmessung; e, Mikroskop; f, Strömungszelle; g, Oberflächen-Probe; h, Durchflussmessung; i Regulierventil)

Das Reinigungsmedium wird unter Umgehung der Strömungszelle zunächst auf die gewünschte Strömungsgeschwindigkeit eingestellt. Nach dem Umlegen des Kugelhahns beginnt die Messung. Nach Ablauf der Reinigungsphase wird der Kugelhahn erneut umgelegt und das Überströmen der Werkstoffoberflächen gestoppt.

Die Dauer der Reinigung beträgt bei den Versuchen mit Einzelpartikeln 2 min und bei den Versuchen mit dem kohäsiven Schmutzfilm 3 min. Vorversuche haben gezeigt, dass in beiden Fällen eine Verlängerung des Reinigungsintervalls keine Veränderung des Reinigungserfolgs bewirkt. Eine Verkürzung der Reinigungsdauer wurde nicht gewählt, um mögliche Einflüsse auf das Ergebnis durch das Anfahren der Reinigungsversuche möglichst gering zu halten.

### **4.3.3 Analyse des Reinigungserfolges**

Mittels Fluoreszenzmikroskopie wurde die Anzahl der Einzelpartikel als auch die Fläche des kohäsiven Schmutzfilmes auf den Versuchsplättchen der unterschiedlichen Materialien bestimmt. Diese Art der Auswertung ermöglicht einen guten Kontrast zwischen Verschmutzung und Hintergrund bzw. Oberfläche, was für die Quantifizierung der Restverschmutzung zwingend erforderlich ist.

Die Auswertung der Einzelpartikelablösungen erfolgt durch das Auszählen der Partikel zu Beginn und nach der jeweiligen Strömungsgeschwindigkeit an den exakt selben Orten. Dies wird durch einen computergesteuerten Mikroskop-Tisch gewährleistet. Die erhaltenen Bilder werden verteilt über die Plättchenoberfläche aufgenommen und mittels automatischer Bildanalyse ausgezählt. Der Quotient aus der Partikelanzahl nach der Reinigung bei einer bestimmten Strömungsgeschwindigkeit zu der Partikelanzahl vor der Reinigung gibt den Reinigungserfolg wieder. Zusätzlich kann aus dem mittleren Durchmesser der Partikeln und der Strömungsgeschwindigkeit, bei welcher 50 % der Partikeln abgelöst wurden, eine mittlere Trennkraft errechnet werden. Diese Kennzahlen dienen dem Vergleich der Reinigbarkeit unterschiedlicher Oberflächen.

Da der kohäsive Schmutzfilm die ganze Probenoberfläche belegen kann und eine stark zusammenhängende Matrix darstellt, ist eine Auswertung einzelner Bilder nicht sinnvoll. Die Analyse der gesamten Werkstoffoberfläche wurde mit dem Fluoreszenzscanner Molecular Imager FX Pro Plus der Firma Bio-Rad Laboratories GmbH (Hercules, Kalifornien, USA) durchgeführt. Vor dem Scannen wurden die beschichteten Oberflächen je 2 min in Leitungswasser eingelegt, um überschüssiges Fluoreszin zu entfernen. Vor und nach jedem Reinigungsvorgang wurden die Plättchen gescannt und die fluoreszierende Fläche mittels Bildanalyse ausgewertet.



**Abbildung 4.17:** Bilder der verschmutzten Werkstoffoberflächen (10 × 20 mm) aufgenommen von dem Fluoreszenzscanner vor (links) und nach der Reinigung (rechts).

Die gesäuberten Bereiche erscheinen auf den Bildern weiß. Der prozentuale Rückstand der zu Beginn der Reinigung vorhandenen Fläche wird zur Bewertung der Reinigbarkeit verwendet.

#### **4.4 Reinigbarkeitsuntersuchungen mit dem EHEDG-Teststand**

Im EHEDG-Test werden ursprünglich kleinere Bauteile und Komponenten (z.B. Ventile, Sensoren etc.) einer Produktionsanlage auf ihre Reinigbarkeit untersucht. Die EHEDG-Methode erkennt Schwachstellen in der Konstruktion (Hygienic Design) sehr genau und ermöglicht den Vergleich der Reinigbarkeit zwischen den Komponenten.

Das Prinzip der EHEDG-Testmethode beruht auf einem Vergleich der Reinigbarkeit zwischen einem Referenzbauteil und dem Testobjekt. Bei dem Referenzbauteil handelt es sich um ein gerades Rohrstück mit gleicher Innenoberfläche und bekannter Oberflächenrauigkeit ( $R_a = 0,5 \mu\text{m}$ ).

Da dieser Test bisher nicht zur direkten Untersuchung von Oberflächenparametern, sondern zur Validierung des Hygienic Designs eingesetzt wurde, ist er zum Zweck dieser Arbeit abgewandelt worden. Im Rahmen der durchgeführten Untersuchungen werden keine Komponenten oder andere komplexere Bauteile verwendet, sondern die Reinigbarkeit der Oberflächen ausschließlich mit geraden Rohren durchgeführt. Es wird demnach nicht auf kritische Stellen getestet, sondern die Restschmutzfläche für jedes „Testrohr“ quantifiziert. Somit ist ein direkter Vergleich der Restverschmutzungsflächen in Abhängigkeit der Oberflächenqualität möglich.

##### **4.4.1 Aufbau des EHEDG-Teststandes**

In beheizbaren Behältern kann die Reinigungslösung und das Frischwasser für die CIP-Reinigung vorgelegt werden. Mittels der digital einstellbaren Kreiselpumpe

strömen die Medien mit 1,5 m/s durch alle hintereinander angeordneten Testrohre (Abbildung 4.18). Eine verlorene Frischwasserreinigung wird vor und nach dem Zirkulationsreinigen mit der Reinigungslösung durchgeführt, damit die im Kreislauf geführte Schmutzmenge etwas minimiert ist und das am Ende zurückbleibende Spülwasser keinen Einfluss auf das Testergebnis haben kann. Während der Reinigung werden Druck, Temperatur und Geschwindigkeit der Flüssigkeiten kontrolliert.

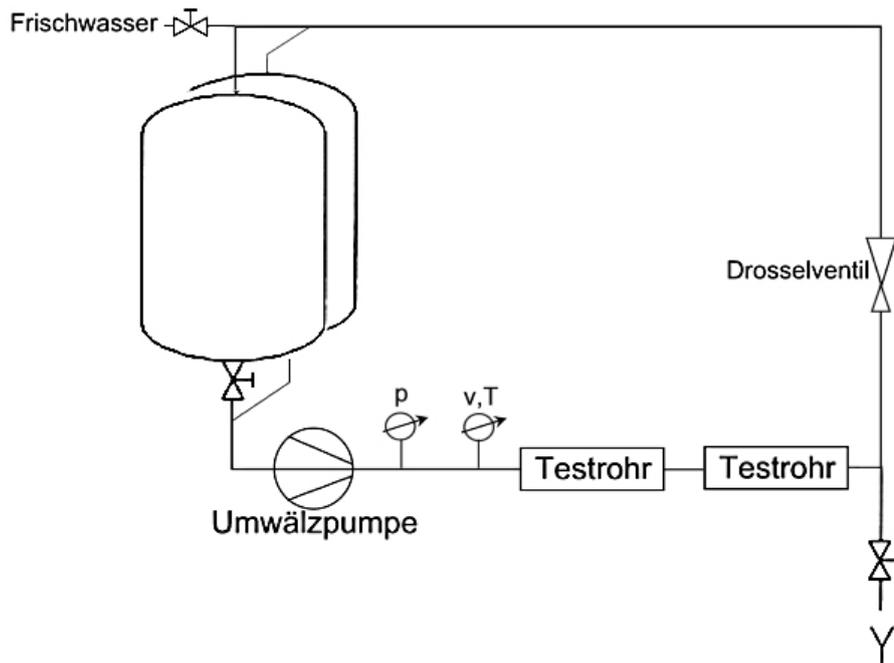
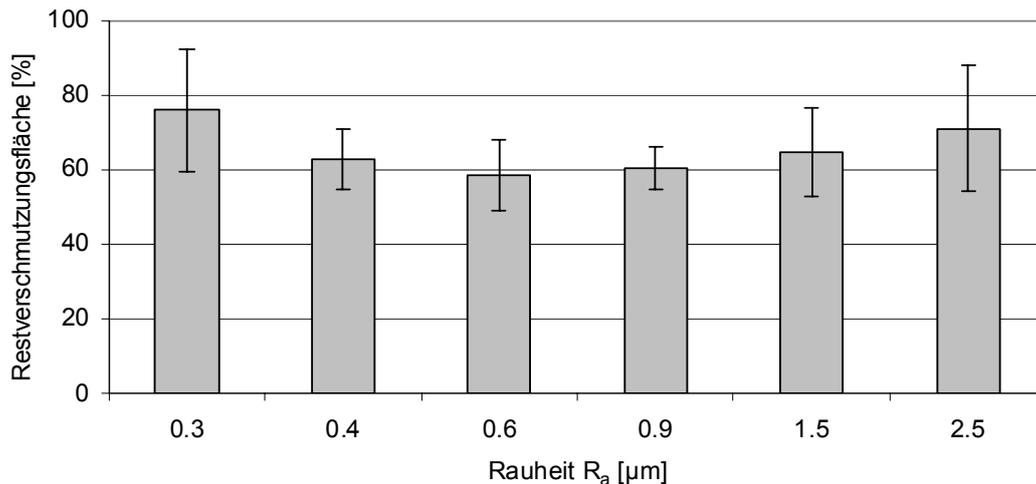


Abbildung 4.18: Schematischer Aufbau der EHEDG-Anlage

#### 4.4.2 Durchführung der Reinigungstests

Der standardisierte EHEDG-Test arbeitet nicht mit reinem Leitungswasser als Reinigungsmittel. Es wird stattdessen eine temperierte, leicht alkalische Reinigungslösung verwendet, um die organische Verschmutzung zu entfernen. Aufgrund der direkten Vergleichbarkeit mit Versuchsergebnissen aus dem Strömungskanal, in welchem Ablöseversuche mit Leitungswasser durchgeführt werden, wurde die Tauglichkeit von reinem, untemperiertem Leitungswasser auch für den EHEDG-Test überprüft (Abbildung 4.19).



**Abbildung 4.19: Restschmutzflächen verschiedener Testrohre nach „EHEDG-Reinigung“ mit reinem, untemperiertem Leitungswasser**

Es stellte sich in diesen Vorversuchen heraus, dass dabei noch ein optisch erkennbarer Schmutzbelag auf allen Innenoberflächen der Rohre zurückblieb (Abbildung 4.19). Dies stellt in Frage, ob bei dieser kalten Kreislaufreinigung ohne Laugezusatz die schichtweise Auflösung des Schmutzfilms während der Reinigungszeit überall bis auf die letzte Schicht (Grenzfläche Schmutz-Werkstoff) vorgedrungen war. Dies würde bedeuten, dass durch diese Reinigungsbedingungen keine Auswirkungen der Oberflächenrauheit detektiert werden können. Da der Reinigungserfolg von dem Reinigungsmedium abhängt und der Oberflächeneinfluss untersucht werden soll, wurden diese Versuche konstant nach dem EHEDG-Standard wie folgt durchgeführt.

Die gesamte innere Oberfläche des Testobjekts bzw. des Testrohres wird mit der kontaminierten Sauermilch (Kap. 4.2.2) benetzt, mit Sterilluft getrocknet und folgendem Reinigungsprogramm unterzogen:

1. 1 min mit kaltem Wasser (10 - 15 °C) bei 1,5 m/s verloren vorspülen.
2. 10 min alkalische Heißreinigung mit 1 % Natronlauge (63 °C  $\pm$  2 °C) im Kreislauf zirkulierend bei 1,5 m/s
3. 1 min mit kaltem Wasser (10 – 15 °C) bei 1,5 m/s verloren nachspülen

Danach werden beide Teile mit SHA-Agar (Shapton- und Hindes-Agar) ausgegossen und für 24 h bei 58 °C in einem Brutschrank inkubiert. Dieser Agar beinhaltet Bromkresolpurpur als Indikator-Substanz. Detailliertere Angaben zu diesem

etablierten Testverfahren können der Literatur [30] entnommen werden und werden deshalb an dieser Stelle nicht weiter erläutert.

Verbleibt Restschmutz nach der Reinigung auf der Oberfläche, keimen die darin enthaltenen Sporen während der Bebrütung aus und färben den Agar durch Säurebildung bei Stoffwechselaktivität von violett nach gelb. Anschließend wird der Agar aus dem Testbauteil herauspräpariert und dünne Scheiben von der Oberfläche herausgeschnitten. Im Gegenlicht wird die gelb verfärbte Fläche ausgewertet und als Restverschmutzungsfläche zur Bewertung der Reinigbarkeit verwendet.

## 5 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die erzielten Ergebnisse dargestellt und teilweise in Bezug zu Untersuchungen diskutiert, die durch AFM-Messungen am Lehrstuhl für Feststoff- und Grenzflächenverfahrenstechnik, Universität Erlangen, Prof. Dr.-Ing. Wolfgang Peukert, durchgeführt wurden. Sämtliche Messungen im Strömungskanal und im EHEDG-Test wurden als Dreifach-Versuche durchgeführt. Angegebene Konfidenzbereiche beziehen sich auf ein Sicherheitsniveau von 95 %.

### 5.1 Untersuchungen der Oberflächenparameter

Der Beitrag, den eine Werkstoffoberfläche selbst zu ihrer Reinigbarkeit leisten kann, ist hauptsächlicher Gegenstand der Untersuchungen. Aus diesem Grund wird in erster Linie auf die Auswirkungen der Oberflächenparameter eingegangen und diese in den jeweiligen Kapiteln für die diversen Kontaminationsarten (partikuläre oder filmartige Verschmutzungen) unterschieden. Bewertungskriterium für die Reinigbarkeit ist die mittlere Trennkraft sowie die Anzahlsummenverteilung der Trennkraft bei der Einzelpartikelablösung und der prozentuale Anteil der Restverschmutzungsflächen nach der Reinigung von filmartigen Verschmutzungen.

#### 5.1.1 Einfluss der Oberflächenrauheit auf die Reinigbarkeit

Da die Oberflächenrauheit, gemessen und ausgedrückt als  $R_a$ -Wert, für viele Anwender die interessanteste topometrische Größe darstellt, wurde dieser Parameter mit allen Verschmutzungsarten auf seinen Einfluss hin untersucht. Von der Seite der anwendenden Industrie gilt das Interesse der einfachen Fragestellung, ob sich eine Oberfläche umso leichter reinigen lässt, je glatter sie ist, oder ob diese These nicht korrekt ist.

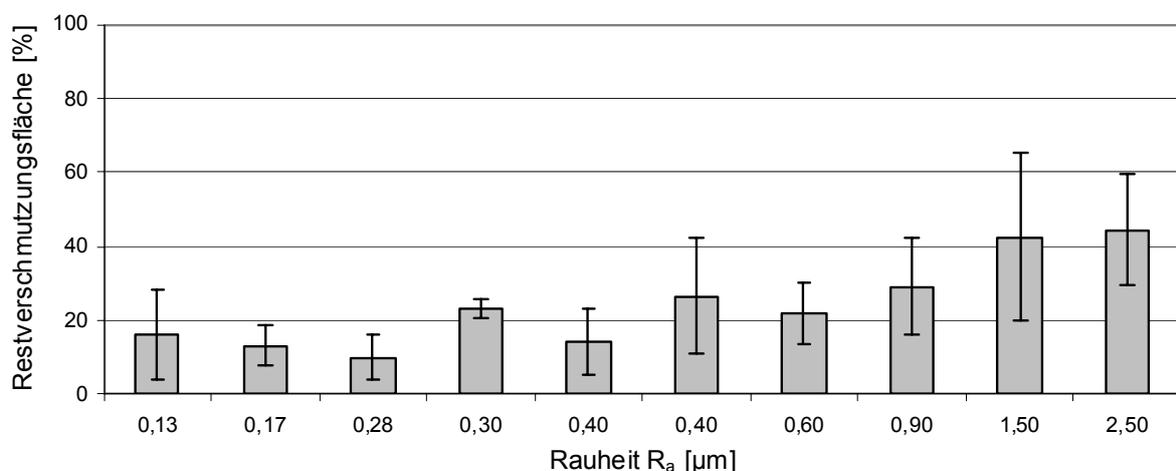
##### 5.1.1.1 Reinigungsverhalten filmartiger Verschmutzungen in Abhängigkeit der Rauheit

Die wohl schwierigsten Verunreinigungen entstehen, sobald sich einzelne Moleküle, Partikeln oder Organismen zusammenschließen und als Verbund und Schmutzfilm eine Oberfläche belegen. Bei der Entfernung dieser flächendeckenden Filme müssen dabei zwei grundlegenden Arten der Reinigung unterschieden werden. Im ersten Fall

dringt Reinigungsmittel diffusiv in den Schmutzfilm ein, löst diesen auf und bewirkt somit den schichtweisen diffusiven Stofftransport der gelösten Kontamination zurück in die Reinigungsflüssigkeit. Im zweiten Fall üben die Reinigungsmittel keinerlei chemischen Einfluss auf den Schmutzfilm aus. Die Reinigungsflüssigkeit kann nur aufgrund ihrer Wandschubspannung beim Überströmen der Verunreinigung diese Ablösen. Sind dabei die kohäsiven Kräfte in dem Schmutzfilm, die diesen zusammen halten und stabilisieren, kleiner als die Haftkraft (adhäsive Kraft) des Films auf der Oberfläche, so wird dieser ebenfalls schichtweise abgelöst. Sind die kohäsiven Kräfte jedoch größer als die adhäsiven Wechselwirkungen, so löst sich der Schmutzfilm bei ausreichender Wandschubspannung direkt von der Oberfläche des Wandmaterials ab (vgl. Kap. 3.1).

### Reinigung durch Auflösung und Diffusion

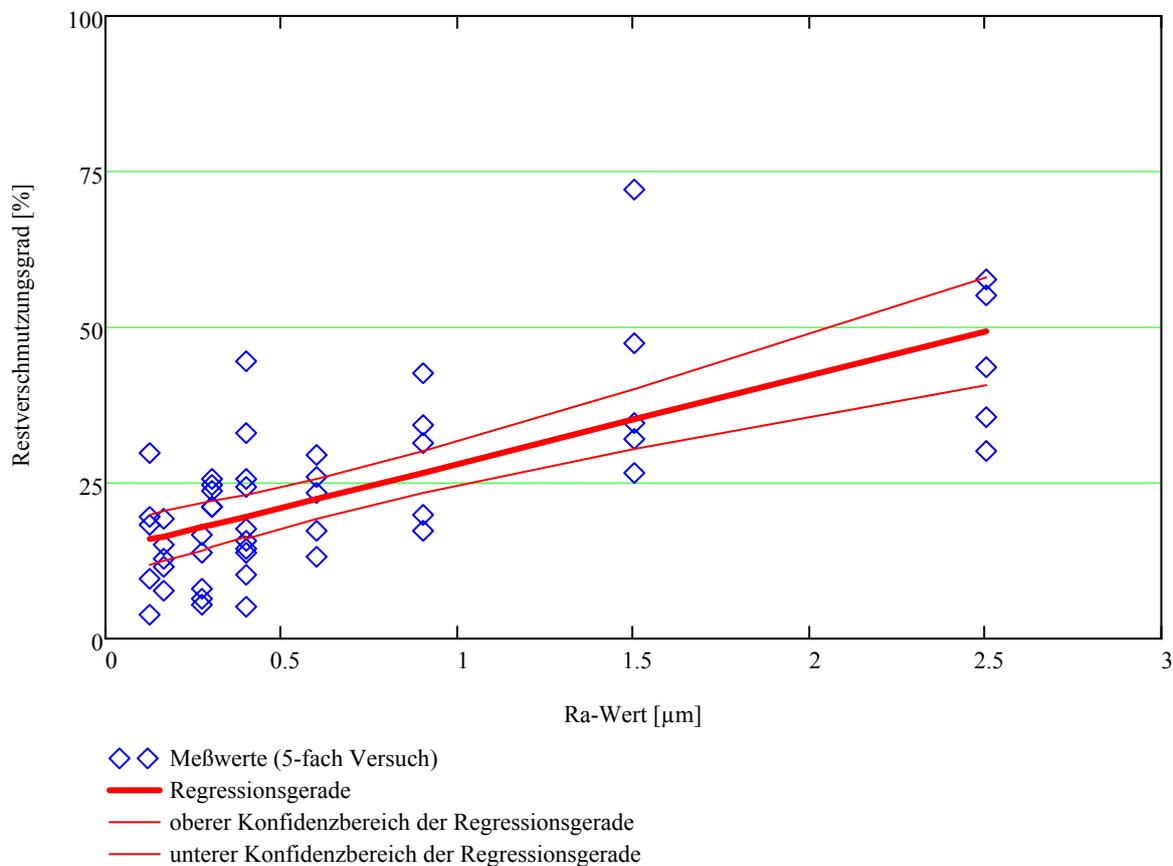
Die Ergebnisse der Reinigbarkeitsuntersuchungen, die gemäß dem EHEDG-Test durch Reinigen mit Laugezusatz (1 % NaOH) und bei einer Reinigungstemperatur von ca. 63 °C erhalten wurden, sind in Abbildung 5.1 dargestellt.



**Abbildung 5.1: Restverschmutzungsflächen auf Edelstahloberflächen unterschiedlicher Rauheit durch auflösende bzw. diffusive Reinigung**

Die Ergebnisse in Abbildung 5.1 zeigen keine strikte signifikante Abhängigkeit des Reinigungserfolges von der Rauheit. In dem untersuchten Rauheitsbereich von  $0,13 \mu\text{m} \leq R_a \leq 2,5 \mu\text{m}$  ist lediglich ein tendenzieller Anstieg der Restverschmutzungsflächen bei höheren  $R_a$ -Werten zu erkennen. Diese Tendenz wird in Abbildung 5.2 überprüft, indem eine lineare Abhängigkeit zwischen Restverschmutzungsgrad und Rauheit angenommen wird und diese mittels linearer

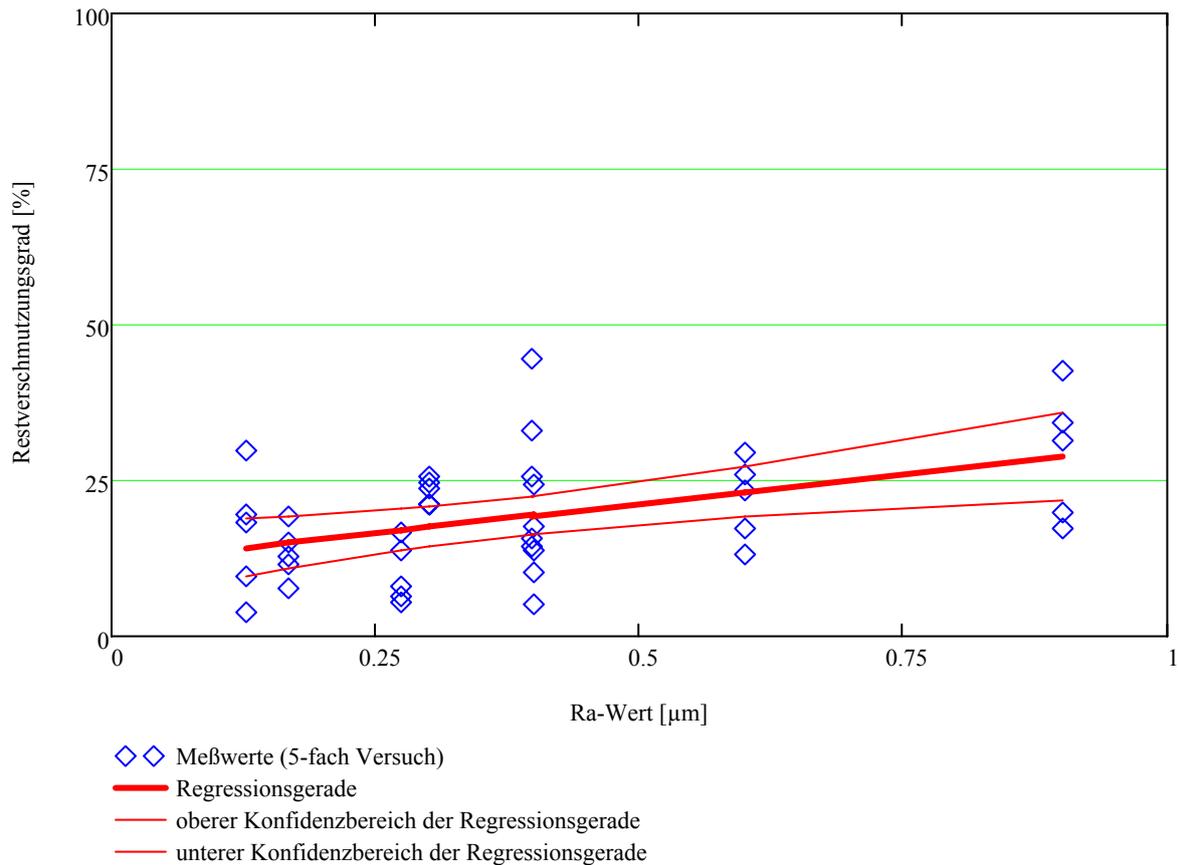
Regression der gemessenen Werte dargestellt wird. Das Verfahren zur linearen Regression ist in der Literatur erläutert [68].



**Abbildung 5.2: Überprüfung einer linearen Abhängigkeit des Restverschmutzungsgrades von der Oberflächenrauheit durch lineare Regression der Messpunkte bei der diffusiven Reinigung**

Zwischen dem oberen und unteren Konfidenzbereich sind alle Steigungen der Regressionsgeraden mit derselben Wahrscheinlichkeit möglich. Es ist in dem dargestellten Rauheitsbereich demnach eine Abhängigkeit des Reinigungserfolges von der Rauheit festzustellen. Da die möglichen Steigungen der Regressionsgeraden innerhalb des Konfidenzbereiches jedoch nicht hoch sind, ist der Einfluss der Rauheit gering (ungefähr: Verdopplung des Restverschmutzungsgrades bei Verzehnfachung des  $R_a$ -Wertes).

Betrachtet man ausschließlich den Rauheitsbereich  $R_a \leq 0,9 \mu\text{m}$ , so wird deutlich, dass hier annähernd eine Horizontale im Konfidenzbereich der Regressionsgeraden möglich ist (Abbildung 5.3). Da in diesem  $R_a$ -Bereich die Werkstoffoberflächen veredelt bzw. poliert werden, ist dieses Ergebnis für die diffuse Reinigung sehr interessant. Das Streben nach möglichst kleinen  $R_a$ -Werten kann durch diese Messungen nicht nachvollzogen werden.

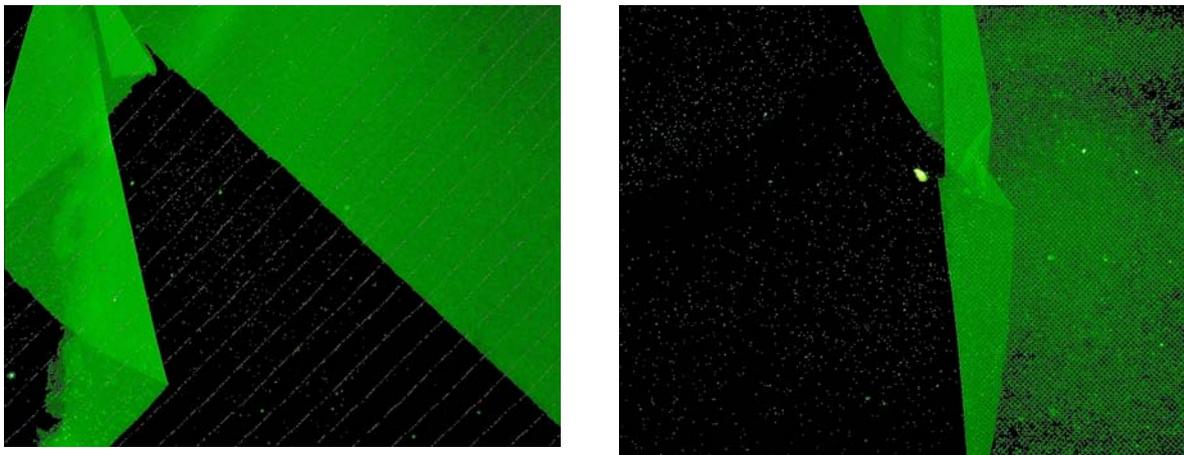


**Abbildung 5.3: Überprüfung auf lineare Abhängigkeit des Restverschmutzungsgrades (Edelstahloberflächen) von der Rauheit im Bereich  $R_a \leq 0,9 \mu\text{m}$**

Diese Ergebnisse lassen darauf schließen, dass die Diffusion der Reinigungslösung in die Verschmutzung und der Stoffübergang des aufgelösten Schmutzes in die Reinigungslösung sehr wenig von den  $R_a$ -Werten abhängt. Da der Stoffaustausch an den Phasengrenzflächen auch nur von der Reynoldszahl, den Stoffkonstanten und der Temperatur abhängt (Kap 3.6), ist dies auch nachzuvollziehen. Die Verschlechterung der Reinigungswirkung bei höheren  $R_a$ -Werten kann daher nur den Grund haben, dass in diesem Rauheitsbereich bereits die Anzahl an strömungsmechanisch ungünstige Stellen zunimmt. Hohe Rauheiten können z.B. durch Strömungsschatten Bereiche niedrigerer Reynoldszahlen schaffen, in welchen die diffusive Grenzschicht vergrößert und der Stoffübergang somit verringert ist.

### Reinigung eines stark kohäsiven Schmutzfilmes durch Enthaftung von der Oberfläche

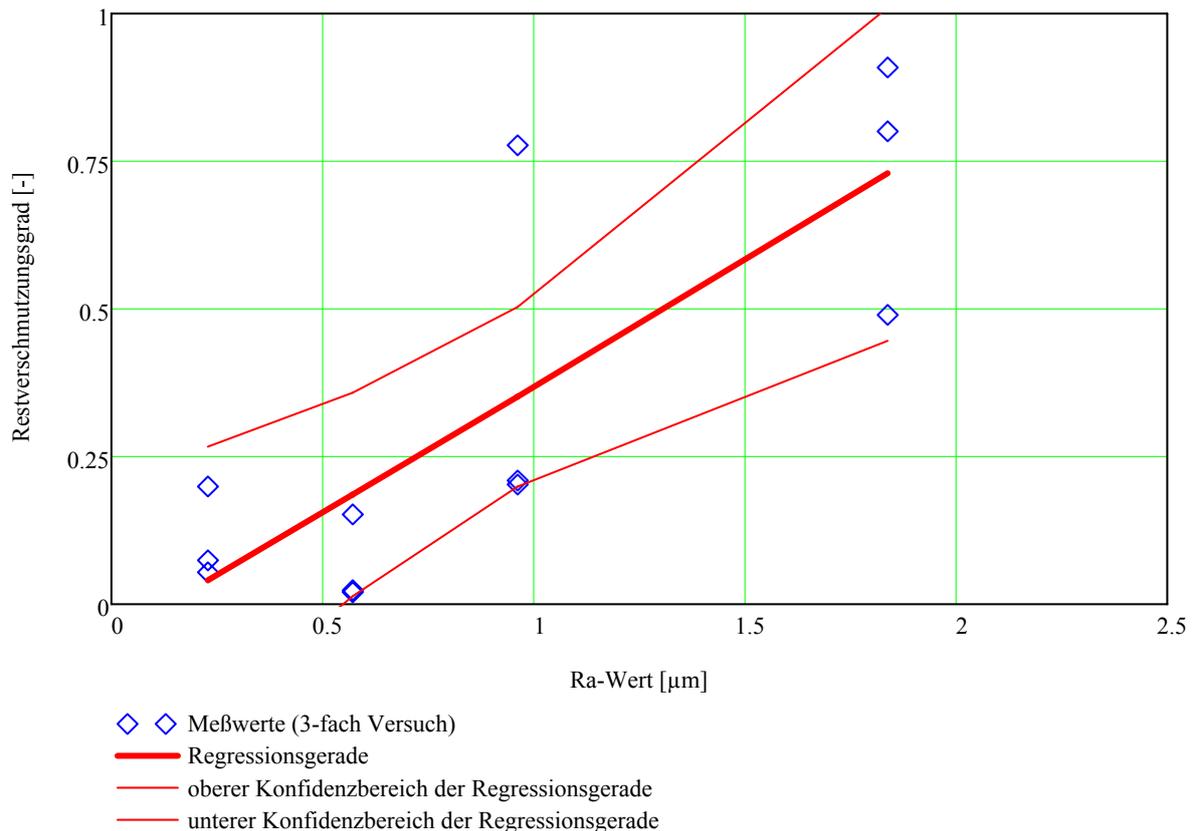
Da bei dieser Form der Reinigung der Schmutzfilm sehr kohäsiv ist und nicht durch das Reinigungsmedium an- oder aufgelöst wird, muss die Trennkraft den Film direkt von der Werkstoffoberfläche ablösen. Dies entspricht nicht der diffusiven schichtweisen Reinigung, sondern die Verunreinigung wird durch die Wandschubspannung plaqueweise oder wie ein Teppich von der Oberfläche abgezogen (Abbildung 5.4). Diese Form der (Ent-)Haftung modelliert sehr resistente Verunreinigungen, wie sie beispielsweise von Biofilmen dargestellt werden.



**Abbildung 5.4: Mikroskop-Aufnahmen der teppich- oder plaqueartigen Filmablösung (grün: fluoreszierender Agarosefilm, schwarz: Werkstoffoberfläche)**

Nach der Ablösung der Agarosefilme sind deutliche Abrisskanten und Bereiche zu erkennen, an welchen der Film umgeschlagen auf der Oberfläche liegt. Dies weist den kohäsiven Charakter des Filmes nach.

In Abbildung 5.5 sind die Ergebnisse der Reinigungsversuche mit dem kohäsiven Agarosefilm dargestellt und auf lineare Abhängigkeit getestet.



**Abbildung 5.5: Überprüfung eines linearen Zusammenhangs zwischen dem Restverschmutzungsgrad und der Rauheit bei der Reinigung kohäsiver Schmutzfilme**

Die Ergebnisse liefern eine deutlichere Abhängigkeit des Restverschmutzungsgrades von dem  $R_a$ -Wert als bei der diffusiven Reinigung, was sich in einer steileren Regressionsgeraden äußert (ungefähr: Versechsfachung des Restverschmutzungsgrades bei Verzehnfachung des  $R_a$ -Wertes). Auf die Haftung eines solchen Filmes kann als theoretische Grundlage ansatzweise das Platte-Platte Modell angewendet werden (Gl. 3.22). Da die damit erhaltene Van der Waals Kraft direkt proportional zu der Fläche ist, ist für eine größere Kontaktfläche eine entsprechend größere Haftkraft zu erwarten. Da im Vergleich zu einer glatten Oberfläche jede Rauheit zwar nicht die Projektionsfläche, aber die effektive Grenz- bzw. Kontaktfläche zwischen Schmutz und Werkstoff vergrößert, wirkt sich die Oberflächenrauheit dementsprechend auf die Haftkraft des Filmes aus.

Nimmt man aufgrund der tangentialen Strömungsrichtung für die Ablösung dieses Filmes das „Abziehen“ wie bei einem Teppich oder einem Klebefilm an (vgl. Abbildung 3.2, rechts), so wird nicht die Haftkraft der kompletten Fläche überwunden. Es muss nur die Haftkraft entlang der Linie überwunden werden, an welcher der Film von der Oberfläche abgelöst wird. Dadurch reduziert sich die benötigte Trennkraft entsprechend. Da diese Trennkraft aber ebenso von der Länge der Linie abhängt,

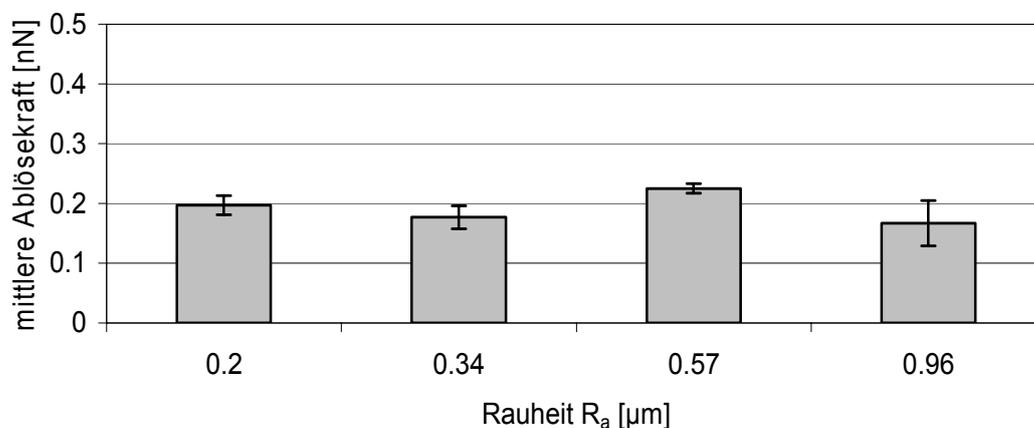
nimmt die Kraft entlang der Linie mit steigender Rauheit zu, da sich im Vergleich zur glatten Oberfläche die effektive Länge erhöht.

Der große Konfidenzbereich resultiert zum einen aus der Tatsache, dass es sich bei diesen Untersuchungen lediglich um Dreifachversuche bei weniger  $R_a$ -Werten handelt. Zusätzlich bedingt diese Form der Reinigung mit einem kohäsiven Schmutzfilm, dass in einem Versuch entweder ein großer Bereich der Fläche auf ein Mal abgereinigt wird oder gar nichts. Dies bewirkt größere Schwankungen innerhalb einer Versuchsreihe.

#### 5.1.1.2 Auswirkung der Oberflächenrauheit auf die Einzelpartikelablösung

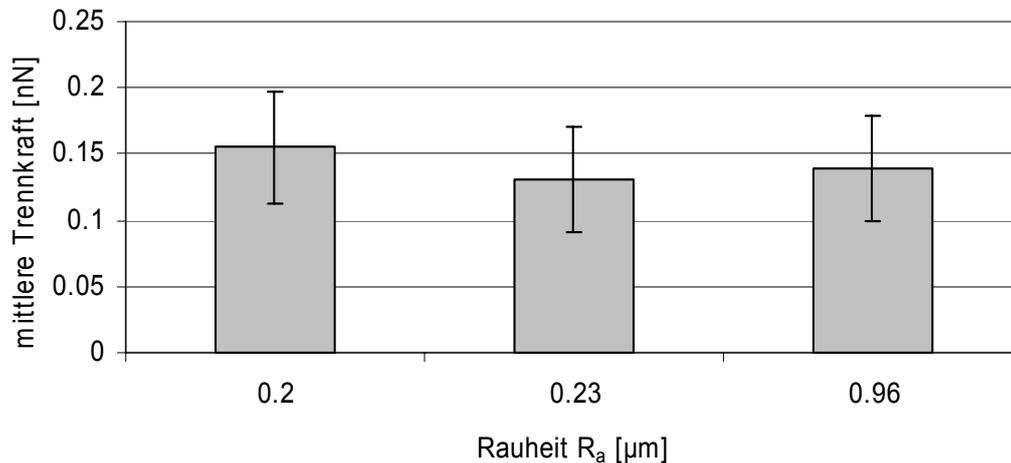
Der theoretische Einfluss der Oberflächenrauheit auf die Partikelhaftung wird allgemein durch die von Rumpf und Rabinovich modifizierte van der Waals Gleichung (Gl. 3.38) beschrieben. Auch wenn kritisch angemerkt werden muss, dass dieser formelle Zusammenhang ausschließlich ideale Modellbedingungen (kugelförmige Rauheit, vgl. Kap. 3.3.3.2) beschreibt und nicht die realen rauen Oberflächen und den entsprechenden Partikelkontakt erfasst. Trotzdem wird dieser theoretische Zusammenhang für die Experimente herangezogen, da der Grundgedanke der Wechselwirkungen zwischen Oberfläche, Rauheit und Partikel unabhängig von der Rauheitstruktur gilt. Darüber hinaus findet die Ablösung der Einzelpartikel parallel zu der überströmten Oberfläche statt, wohingegen die Haftkraft senkrecht zu der Oberfläche wirkt. Ein Vergleich der absoluten Werte der theoretischen Haftkräfte mit den gemessenen Trennkräften ist daher nicht zielführend.

Die Ergebnisse der Dreifachversuche zur Untersuchung des Rauheitseinflusses durch Ablösung im Strömungskanal sind in den Abbildung 5.6, Abbildung 5.7 und Abbildung 5.8 für unterschiedliche Partikel dargestellt.

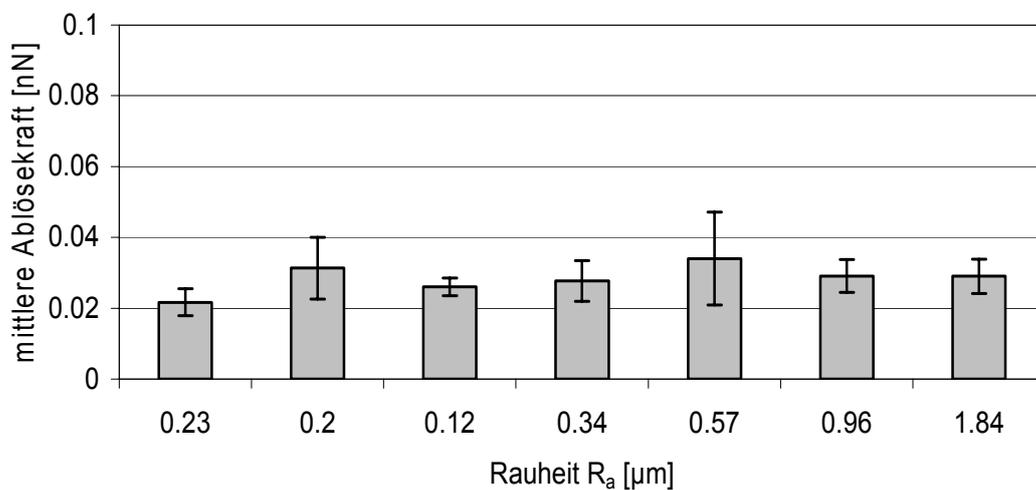


**Abbildung 5.6: Ablösung von Hefezellen ( $\varnothing$  5,45  $\mu\text{m}$ ) von Edelstahloberflächen unterschiedlicher Rauheit**

In dem untersuchten Rauheitsbereich besitzt der  $R_a$ -Wert keinen Einfluss auf die Trennkräfte der Hefezellen. Da die Hefezellen mit einem Durchmesser von  $5,45 \mu\text{m}$  größer sind als die nominellen  $R_a$ -Werte, sind außerdem E.Coli-Zellen (elliptische Form,  $2-3 \mu\text{m}$ ) und Polystyrolkugeln ( $\varnothing 1,16 \mu\text{m}$ ) als Einzelpartikel zur Untersuchung des Rauheitseinflusses verwendet worden.



**Abbildung 5.7: Reinigungsergebnis von E.Coli-Zellen (elliptisch,  $2-3 \mu\text{m}$ ) von Edelstahloberflächen**

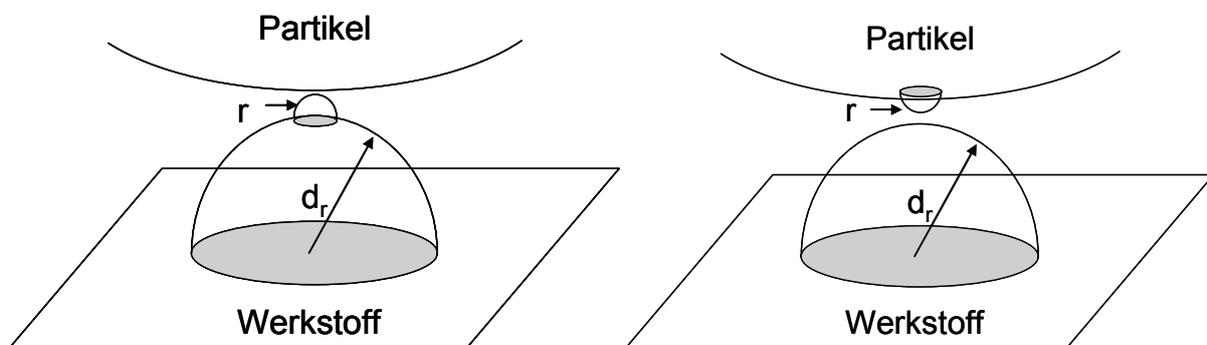


**Abbildung 5.8: Mittlere Trennkräfte der Polystyrolpartikeln ( $\varnothing 1,16 \mu\text{m}$ ) auf Edelstahloberflächen**

Abbildung 5.7 und Abbildung 5.8 zeigen, dass auch bei kleineren Einzelpartikeln bis zu einem Durchmesser, welcher in der Größe des  $R_a$ -Wertes und darunter liegt, kein Einfluss der Rauheit festzustellen ist.

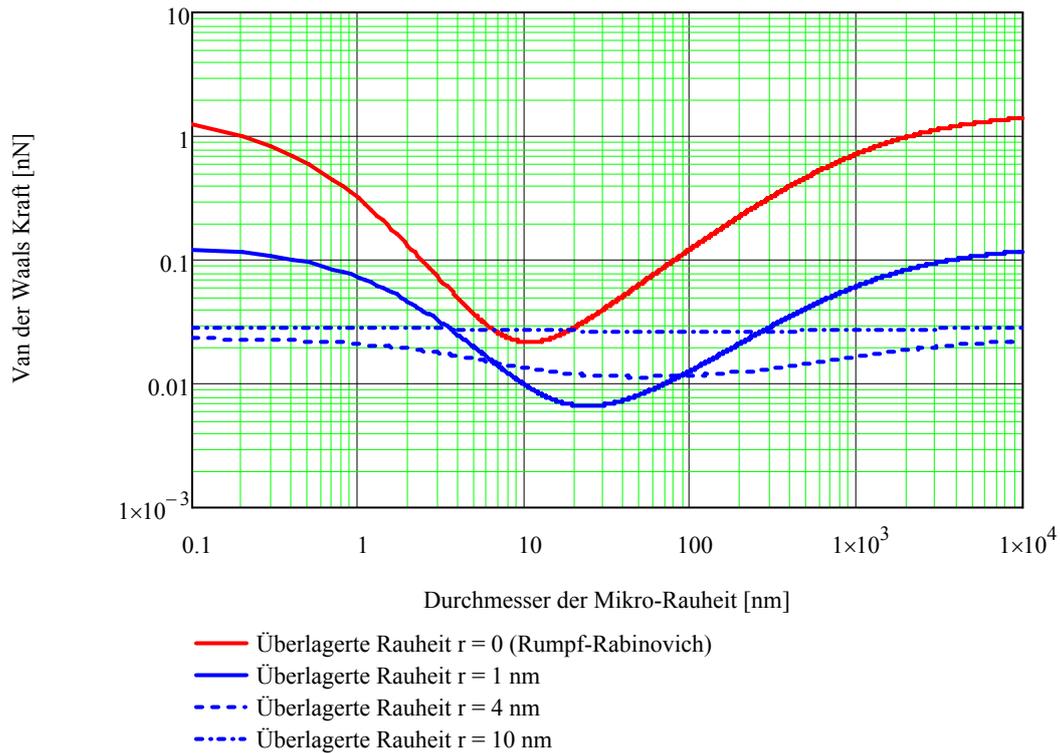
Wird die formelle Beziehung nach Rumpf und Rabinovich zugrunde gelegt (Gl. 3.38 bzw. Gl. 3.39), so wären verschiedene Erklärungen für das Fehlen eines Rauheitseinflusses möglich. Eine Theorie wäre, dass alle getesteten Rauheiten bereits so groß sind, dass die van der Waals Wechselwirkungen zwischen den Partikeln und den Rauheiten vergleichbar mit denen zwischen Partikeln und einer glatten Oberfläche sind. Die Partikeln „spüren“ in jedem Fall einen Kontakt mit einer ebenen Oberfläche.

Die andere Erklärung besteht in dem Vorhandensein einer Rauheit im Sub-Mikrometerbereich, welche den messbaren „Mikro-Rauheiten“ auf allen Oberflächen überlagert ist und als „Nano“-Rauheit die Haft- bzw. Trennkräfte dominiert. Diese überlagerte Rauheit kann sich entweder direkt auf der Mikro-Rauheit der Werkstoffoberfläche befinden (Abbildung 5.9) oder von dem Kontaktpartner stammen, welcher auch als rau angenommen werden kann.



**Abbildung 5.9: Schematische Darstellung der überlagerten Nano-Rauheit mit Radius  $r$  auf der Werkstoffoberfläche (links) und auf der Partikel (rechts)**

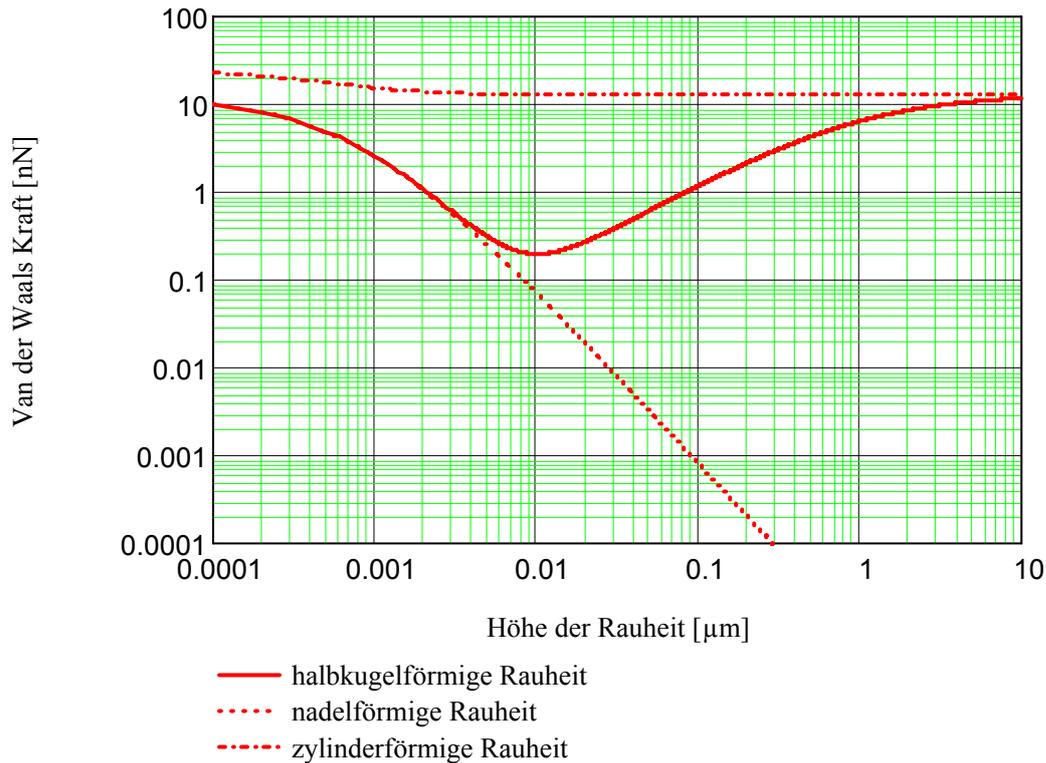
Der Einfluss der überlagerten Rauheit  $r$ , welche in Analogie zu der Superpositionierung nach Rumpf-Rabinovich in der Berechnung der Van der Waals Kraft berücksichtigt werden kann, ist in Abbildung 5.10 dargestellt.



**Abbildung 5.10: Einfluss der überlagerten Rauheit  $r$  (Radius der Nano-Rauheit) auf die Van der Waals Kraft einer  $1,16 \mu\text{m}$  Polystyrolpartikel auf Edelstahl unterschiedlicher Mikro-Rauheit in Wasser**

Es ist deutlich zu erkennen, dass bereits bei einer zusätzlichen, überlagerten Rauheit mit einem Radius  $r = 4$  nm der Einfluss der Mikro-Rauheit fast verschwunden ist. Während dieser Einfluss bei  $r = 1$  nm noch deutlich zu erkennen ist, ist bei  $r = 10$  nm bereits keine Abhängigkeit mehr gegeben. Dieser Grenzbereich hängt von dem Durchmesser der untersuchten Partikel ab.

Theoretische Berechnungen zeigen, dass neben der Größe der Rauheit deren Form die Van der Waals Kraft maßgeblich beeinflusst. In Abbildung 5.11 ist dargestellt, welche Auswirkungen eine nadelförmige bzw. sehr spitze Rauheit und eine zylinderförmige Rauheit im Gegensatz zu der im Rumpf und Rabinovich Modell beschriebenen halbkugelförmigen Rauheit auf die resultierende Kraft haben.



**Abbildung 5.11: Auswirkungen der Form der Rauheit auf die Van der Waals Kraft**

In dem fertigungstechnisch bedingten Rauheitsbereich, der in diesem Diagramm zwischen Rauheitshöhen von  $0,1 \mu\text{m} < R_a < 1 \mu\text{m}$  liegt, ergeben sich bei gleicher Rauheitsgröße Unterschiede in der Van der Waals Kraft von vier bis fünf Größenordnungen. Auf einer industriellen Edelstahloberfläche befindet sich eine Vielfalt von Rauheitsstrukturen und -formen. Bei Messungen der Trennkräfte von Einzelpartikeln könnte daher der Einfluss der Rauheitsgröße untergehen. Die resultierende mittlere Trennkraft wäre damit ebenso mehr von der Verteilung der Rauheitsformen abhängig, welche sich bei den verschiedenen geschliffenen Edelstahloberflächen nicht unterscheiden.

Der Einfluss der Oberflächenrauheit wurde neben dem Strömungskanal auch durch Trennkraftmessungen im Atomic-Force-Microscope (AFM) untersucht .

### 5.1.1.3 Vergleich der Versuchsergebnisse mit AFM-Messungen

Werden in den AFM-Versuchen die Modellbedingungen erfüllt, auf welchen die Gleichung nach Rumpf und Rabinovich basiert (glatte und kugelförmige Partikel, kugelförmige Rauheit, Ablösung senkrecht zur Oberfläche), so kann diese Theorie durch die AFM-Messungen bestätigt werden. Dazu werden Trägeroberflächen mit kugelförmigen Partikeln mittels Dip-Coating beschichtet, so dass eine geschlossene Oberfläche mit (halb-)kugelförmigen Rauheiten entsteht. Wird der Durchmesser der

Partikeln für das Dip-Coating variiert, so können die Oberflächenrauheiten verändert werden. Die Auswirkungen auf die im AFM gemessenen Trennkräfte zwischen diesen Oberflächen und einer  $5\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$ -Partikel ist in Abbildung 5.12 dargestellt.

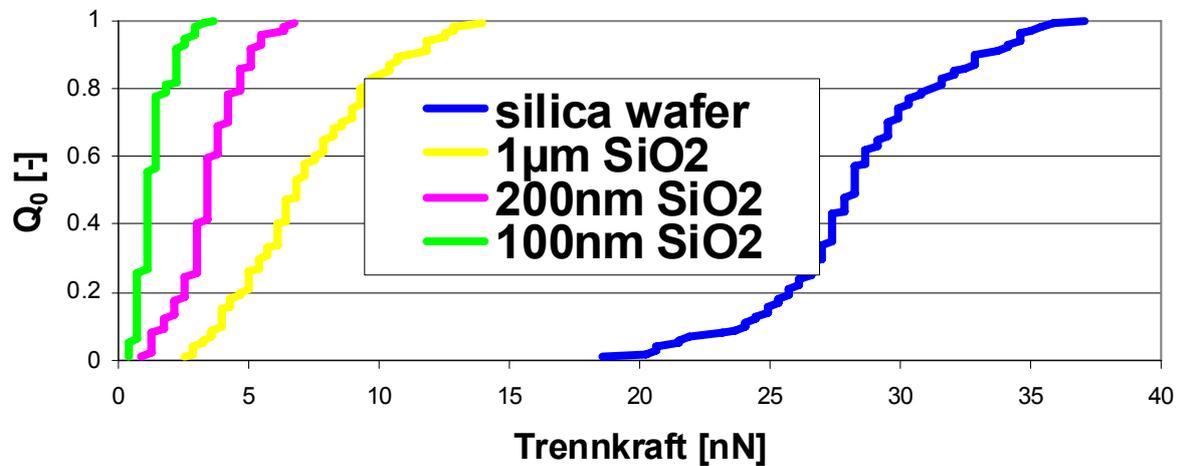


Abbildung 5.12: Reduzierung der Trennkräfte durch Beschichtung mit Nanopartikeln [1]

Diese Ergebnisse zeigen, dass das Vorhandensein der Rauheiten bei dem Kontakt mit der glatten, harten  $\text{SiO}_2$ -Partikel eine Reduktion der AFM-Trennkräfte bewirkt. Die glatte Referenzoberfläche weist deutlich höhere Trennkräfte auf. Ein ähnliches Ergebnis wird unter Verwendung der Oberflächen erhalten, die keine kugelförmigen Rauheiten besitzen, sondern deren Rauheitsstruktur graben- oder rillenförmig ist (Abbildung 5.13).

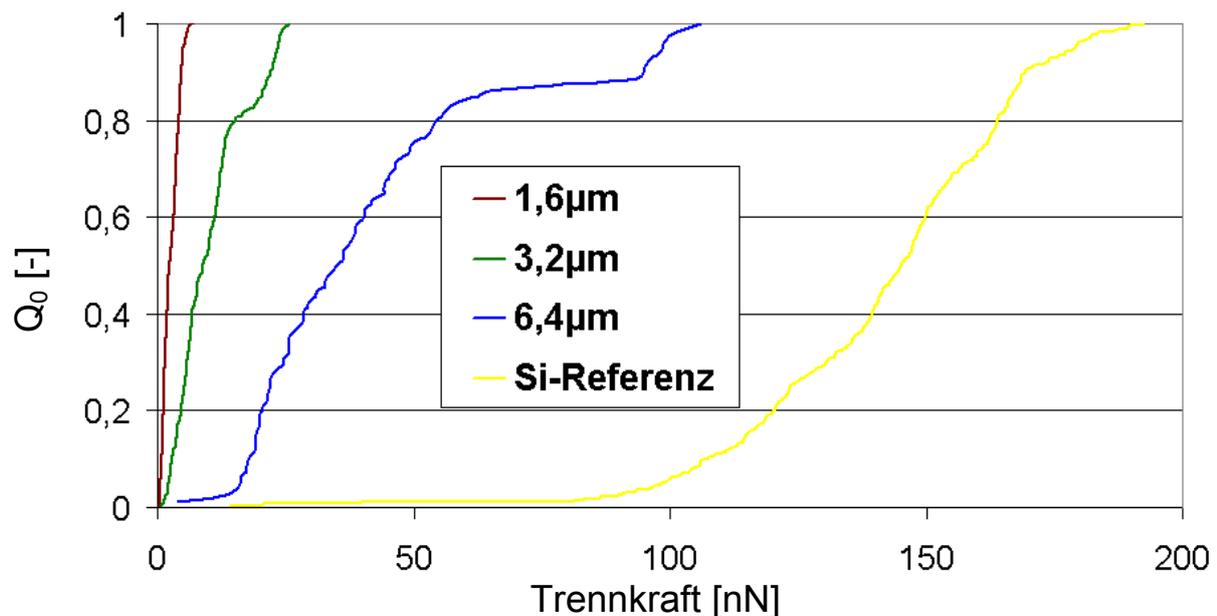
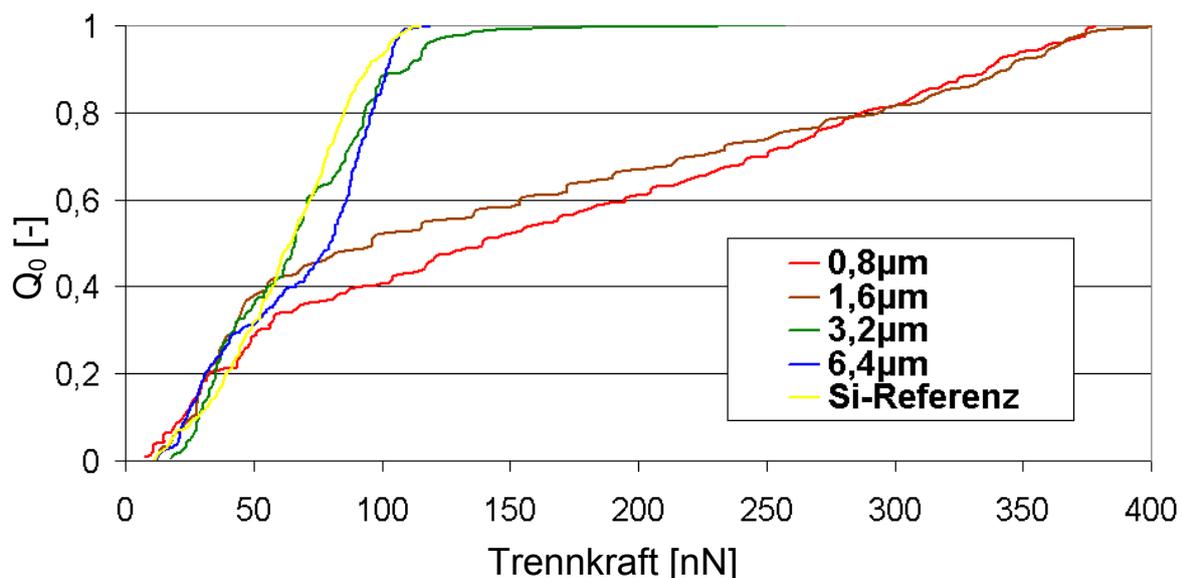


Abbildung 5.13: Anzahlsummenverteilung der mit AFM gemessenen Trennkräfte einer  $\text{SiO}_2$ -Partikel ( $\varnothing 10\ \mu\text{m}$ ) auf Oberflächen mit unterschiedlich breiten Gräben

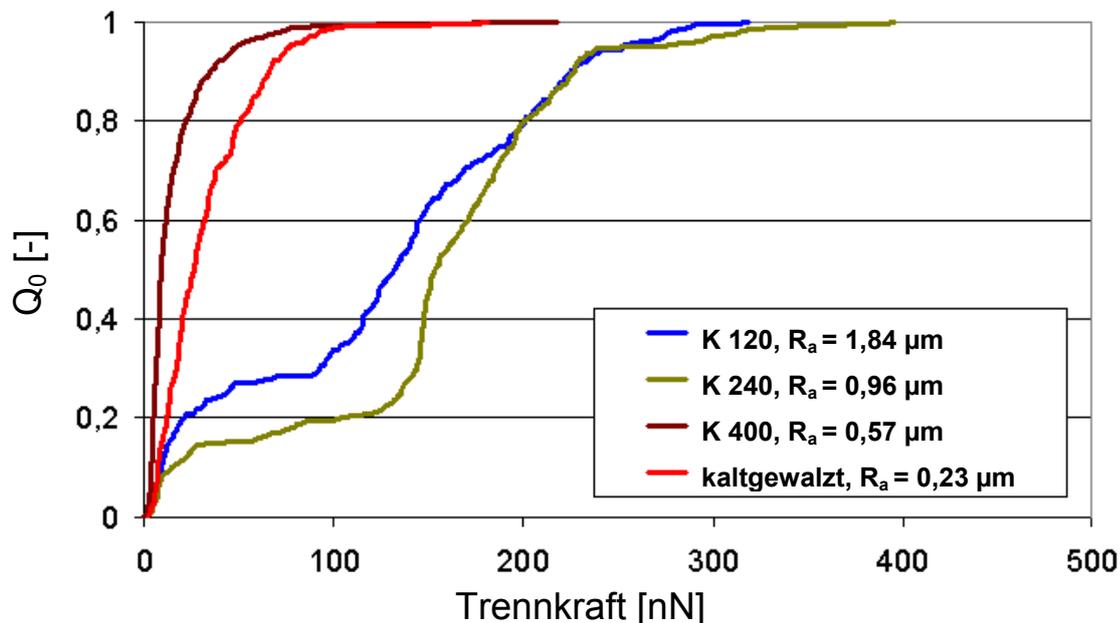
Diese Versuche zeigen, dass die verwendeten Rauheiten in dieser Versuchsanordnung nie eine Erhöhung der Van der Waals Kräfte im Vergleich zu der glatten Referenzoberfläche hervorrufen können. Ändert sich bei den Versuchsbedingungen die verwendete Partikel hin zu einer weicheren, deformierbaren Partikel, so kehrt sich der Rauheitseinfluss um. Ein Grund dafür könnte sein, dass an Kanten oder Spitzen die auf die Oberfläche aufgetragenen Partikeln besonders verformt werden (Kap. 3.3.4). Dies bewirkt eine Vergrößerung der Kontaktfläche, was im Falle der plastischen Deformation einer Erhöhung der Haftkraft entspricht (Abbildung 5.14).



**Abbildung 5.14:** Anzahlsummenverteilung der mit AFM gemessenen Trennkraft einer „deformierbaren“ Polystyrol-Partikel ( $\varnothing 5,27 \mu\text{m}$ ) auf Oberflächen mit unterschiedlich breiter grabenförmiger Rauheit

Aus Abbildung 5.14 wird deutlich, dass durch das Vorhandensein vieler Kanten in der Struktur der Oberfläche (viele Gräben unterhalb einer Partikel) höhere Trennkraft benötigt werden. Die Anzahl der Kanten ist bei den kleineren Abmessungen größer ( $0,8 \mu\text{m}$  und  $1,6 \mu\text{m}$ ), da sich mehr Gräben in der Projektionsfläche der Partikel befinden. Die daraus resultierenden Trennkraftverteilungen für  $0,8 \mu\text{m}$  und  $1,6 \mu\text{m}$  breite Gräben belegen diese Theorie. Im Falle der Referenzoberfläche und der  $6,4 \mu\text{m}$  Oberfläche befindet sich nicht immer eine Kante unter dem Partikel, da das Partikel bei einem Durchmesser von  $5,27 \mu\text{m}$  in die Gräben hinein passt. Nur vereinzelt kommt das Partikel auf einer einzelnen Kante zu liegen, was sich in dem leicht bimodalen Verlauf der Trennkraftkurve erkennen lässt. Es kann dabei nicht ausgeschlossen werden, dass es mit der Verformung zu einem Quetschen der Partikeln kommt, was die Trennkraft ebenfalls ansteigen lassen würde.

Werden mit dem AFM die Trennkräfte zwischen diesen deformierbaren Polystyrolpartikeln und Edelstahloberflächen unterschiedlicher Rauheit gemessen, so zeigt sich eine Abhängigkeit von der Rauheit. Die Trennkräfte steigen mit zunehmender Rauheit (Abbildung 5.15).



**Abbildung 5.15: Anzahlsummenverteilung der im AFM gemessenen Trennkräfte für Polystyrolpartikeln ( $\varnothing 5,27 \mu\text{m}$ ) auf unterschiedlichen Edelstahloberflächen**

Die Erklärung für den qualitativ und quantitativ unterschiedlichen Einfluss der Oberflächenrauheit im Vergleich zu den Ergebnissen der Strömungsablösung ist in den Versuchsbedingungen der AFM-Messungen zu finden. Im AFM wird eine Partikel nach dem Berühren der Oberfläche noch mit einer zusätzlichen Normalkraft auf die Oberfläche gedrückt, bevor es wieder von dieser abgelöst wird. Diese zusätzliche Normalkraft kann v.a. bei dem Vorhandensein von Rauheiten zum Überschreiten der kritischen Spannung innerhalb der Partikel und somit zur plastischen Deformation führen (Kap. 3.3.4). Während bei plastisch deformierbaren Partikeln (beispielsweise an Kanten) die Haftkräfte ansteigen, sinken diese bei harten, undeformierten Partikeln an denselben Stellen auf einer Oberfläche. Durch die Arbeitsgruppe von Prof. Peukert et al. [1] konnte dieses gegenläufige Verhalten festgestellt werden.

Vor dem Hintergrund dieser Ergebnisse kann die Erkenntnis gewonnen werden, dass die Verformung der Polystyrolpartikeln im Versuchsaufbau der Strömungsablösung nicht so groß sein kann wie während der AFM-Versuche. Dieser Schluss liegt nahe, da während der Versuchsdurchführung mit dem Strömungskanal auf die Partikeln nur die Haftkraft als Normalkraft wirkt und keine zusätzliche Kraft eine Verformung

verursacht. Da bei der Strömungsablösung keine rauheitsabhängige Deformation der Partikeln bewirkt wird, ist im Gegensatz zu den AFM-Messungen auch kein Rauheitseinfluss vorhanden.

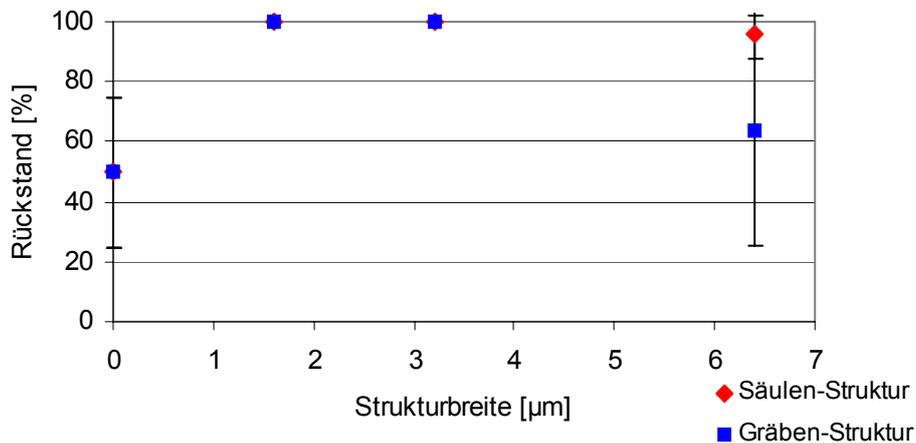
Die AFM-Messungen sind daher zur direkten Beschreibung der Reinigbarkeit verschiedener Oberflächen als alleinige Methode nicht gut geeignet. Vor allem wenn die Testoberflächen sehr inhomogen sind und die Rauheitserhebungen in dem Bereich des AFM-Hubs der Cantilever liegen, treten Probleme bei den Messungen auf. Als Ergänzung zu Reinigungsversuchen dieser Arbeit liefern sie jedoch wertvolle Einblicke in das Ablöseverhalten einzelner Partikel. Aus den Ergebnissen der durchgeführten AFM-Versuche kann die richtungweisende Tendenz abgeleitet werden, dass bei Verwendung weicher Partikeln, die sich bereits durch ihre eigene Haftkraft plastisch verformen lassen, auch in der Strömungsablösung ein Einfluss der Rauheit gemessen werden müsste. Wo die Grenze zwischen harten und weichen Partikeln dabei zu ziehen ist, kann noch nicht genau beantwortet werden, da die kritische Spannung neben dem Material von der Größe der Partikeln von der lokalen Topographie am Ort des Kontakts abhängt.

### **5.1.2 Einführung des Particle-Size-Effect bei der Einzelpartikelablösung**

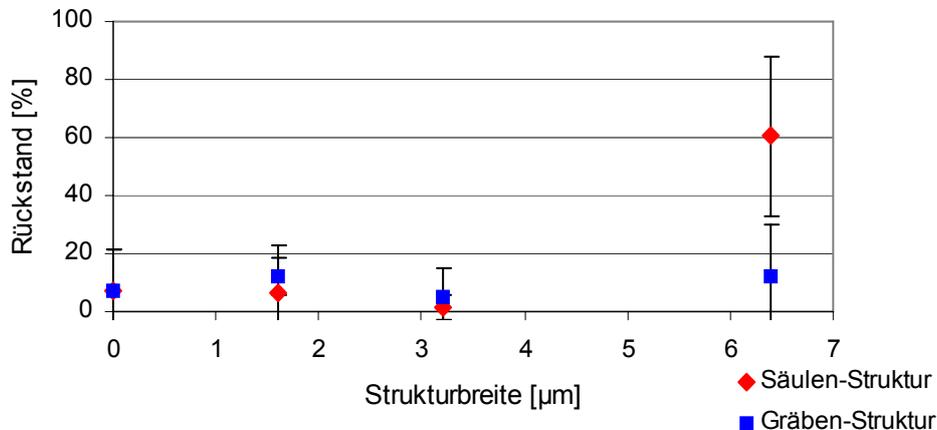
Eine weitere Möglichkeit, welche die erhaltenen Ergebnisse der Einzelpartikelablösung erklären kann, ist in der Topographie der Edelstahloberflächen zu suchen. Auf den Edelstahloberflächen ist eine Vielzahl von Oberflächenstrukturen zu finden, wie z.B. Gräben, Riefen, Spitzen, Senken oder glatte Bereiche. Soll ein Partikel durch Überströmen von Wasser von dieser Oberfläche abgelöst werden, so ist es wichtig, ob es sich in einer Rille oder auf einer Spitze usw. befindet. Diese Unterscheidung kann bei Verwendung eines  $R_a$ -Wertes, der für die gesamte Oberfläche gilt, jedoch nicht berücksichtigt werden. Würde die Oberflächenstruktur die Kontaktkräfte und somit auch die Trennkkräfte dominieren, so würde auf den Edelstahloberflächen bei einer statischen Verteilung aller Strukturen stets ein daraus resultierendes Mittelwert für die Trennkkräfte gemessen werden. Die Reinigbarkeitsergebnisse würden in diesem Fall mehr von der Art der Strukturen als von deren Größe abhängen.

Durch die Verwendung von Polystyrolpartikeln unterschiedlichen Durchmessers und mittels der strukturierten Siliziumoberflächen, in welche Gräben unterschiedlicher lateraler Abmessungen bei gleicher Tiefe geätzt wurden, können verschiedene Kontaktfälle hervorgerufen und untersucht werden. Die Polystyrolpartikeln mit einem Durchmesser von  $1,16 \mu\text{m}$  sind kleiner als die Höhe und Breiten der Gräben und befinden sich daher stets in der geätzten Struktur (mit Ausnahme der glatten Referenzoberfläche). Die Polystyrolpartikeln mit einem Durchmesser von  $5,27 \mu\text{m}$

liegen sowohl bei der Referenzoberfläche, als auch bei den 1,6  $\mu\text{m}$  und den 3,2  $\mu\text{m}$  breiten Strukturen auf. Bei der Oberfläche mit den 6,4  $\mu\text{m}$  breiten Gräben oder Säulen liegen die 5,27  $\mu\text{m}$  Partikeln dagegen zwischen den Strukturen. Die Reinigungsergebnisse, die aus diesen Kontaktfällen resultieren, sind in Abbildung 5.16 und Abbildung 5.17 dargestellt.



**Abbildung 5.16:** Rückstände von Polystyrolpartikeln ( $\varnothing = 1,16 \mu\text{m}$ ) nach Reinigung im Strömungskanal ( $v_{\text{Fl}} = 5,3 \text{ m/s}$ )



**Abbildung 5.17:** Rückstände von Polystyrolpartikeln ( $\varnothing = 5,27 \mu\text{m}$ ) nach Reinigung im Strömungskanal ( $v_{\text{Fl}} = 5,3 \text{ m/s}$ )

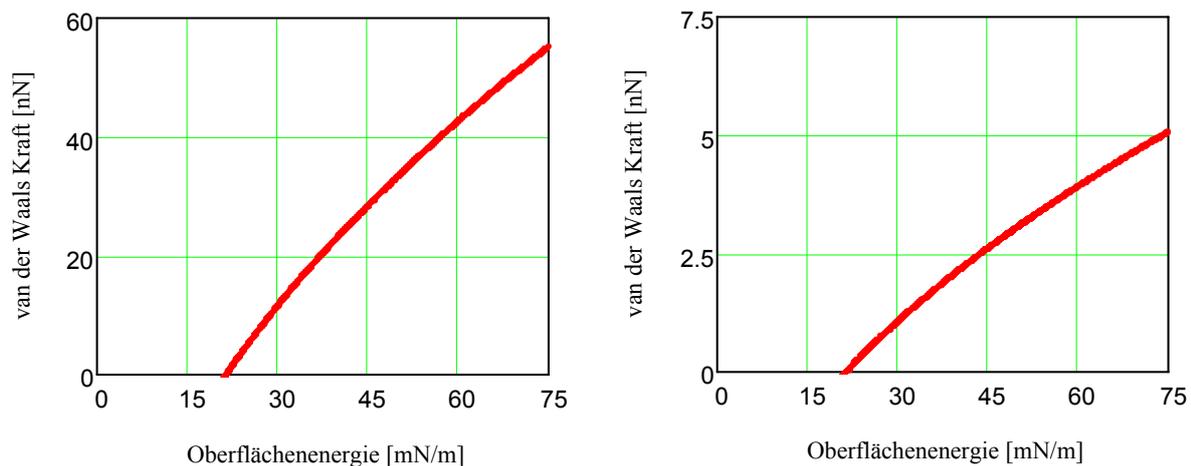
Die Ergebnisse zeigen, dass der Reinigungserfolg von der Kombination aus Partikeldurchmesser und Strukturabmessungen abhängt. Für die 1,16  $\mu\text{m}$  Partikel wird auf den Oberflächen der 1,6  $\mu\text{m}$  und der 3,2  $\mu\text{m}$  Strukturen keine Ablösung erreicht, während sich bei der glatten Referenz und der 6,4  $\mu\text{m}$  Gräben-Struktur ein deutlich besseres Ergebnis ergibt. Die 5,27  $\mu\text{m}$  Partikel lassen sich dagegen von fast allen Oberflächen ungefähr gleich erfolgreich ablösen.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Frage der Reinigbarkeit der Oberflächen nicht durch die Rauheit alleine beantwortet werden kann. Je nach Verhältnis zwischen Strukturabmessung und Partikelabmessung ergeben sich sehr gute oder sehr schlechte Reinigbarkeiten, was im Rahmen der Untersuchungen als „Particle-Size-Effect“ bezeichnet wurde [1]. Die Reinigbarkeit einer Oberfläche kann demnach keine Materialkonstante sein.

Die Frage, warum die Reinigbarkeit der 6,4  $\mu\text{m}$  Säulen-Strukturen schlechter ist als die der 6,4  $\mu\text{m}$  Gräben-Struktur, könnte an unterschiedlichen Strömungsverhältnissen in den wandnahen Bereichen liegen. Dies konnte im Rahmen dieser Arbeit aber nicht überprüft und verifiziert werden.

### 5.1.3 Das Oberflächenmaterial bzw. die Oberflächenenergie als Parameter der Reinigbarkeit

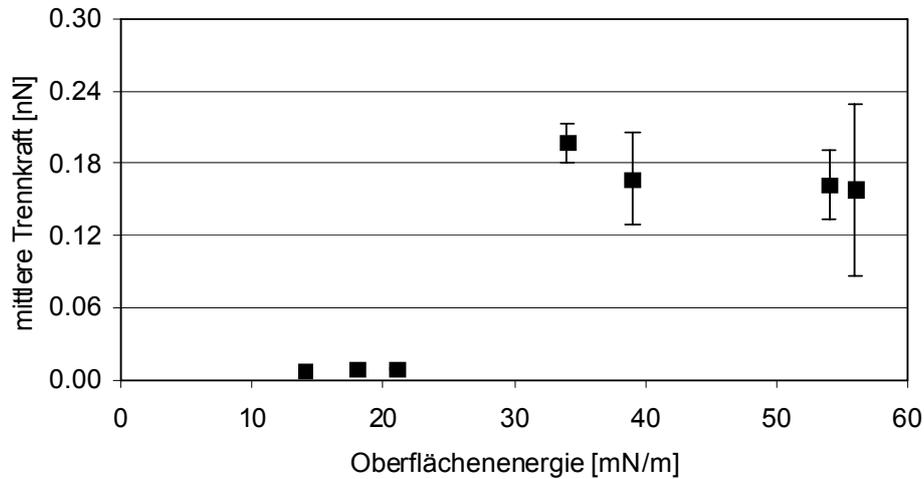
Die Auswirkung der Oberflächenenergie auf das Reinigungsergebnis wurde durch die Ablösung von Einzelpartikeln untersucht. Für die verwendeten Polystyrolpartikeln kann nach Gleichung 3.7 und 3.22 der theoretische Einfluss der Oberflächenenergie der Werkstoffoberfläche errechnet werden. Da in die Hamaker Konstante auch die Oberflächenenergie des Partikels und die Oberflächenspannung des Mediums eingehen (Gl. 3.10), ergibt sich der in Abbildung 5.18 dargestellte Verlauf.



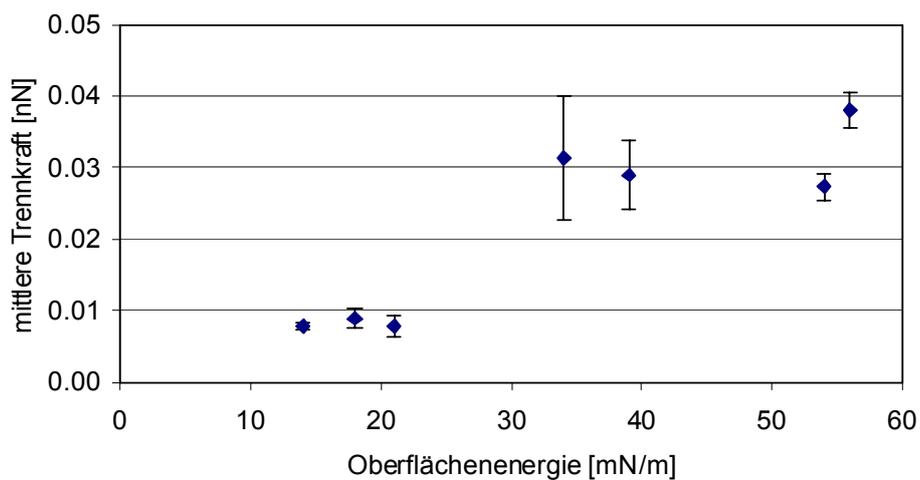
**Abbildung 5.18: Theoretische Abhängigkeit der Van der Waals Kräfte einer Hefezelle ( $\text{\O} 5,45 \mu\text{m}$ , links) und einer Polystyrolpartikel ( $\text{\O} 1,16 \mu\text{m}$ , rechts) in Wasser von der Oberflächenenergie der Werkstoffoberfläche**

Für die Einzelpartikelablösung wurden unterschiedliche Werkstoffe verwendet. Neben PTFE wurden beschichtete und unbeschichtete Edelstahloberflächen eingesetzt, da somit eine vergleichbare Rauheit und vergleichbare

Oberflächentopographie gewährleistet werden konnte. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.19 und Abbildung 5.20 dargestellt.



**Abbildung 5.19: Einfluss der Oberflächenenergie auf die mittleren Trennkräfte von Hefezellen bei Oberflächen vergleichbarer Rauheit**



**Abbildung 5.20: Einfluss der Oberflächenenergie auf die mittleren Trennkräfte von Polystyrolpartikeln bei Oberflächen vergleichbarer Rauheit**

Die Ergebnisse zeigen signifikant, dass die niederenergetischen Oberflächen, die im Bereich der Oberflächenspannung von Wasser liegen, geringere mittlere Trennkräfte bewirken. Der Unterschied in den Größenordnungen der Trennkräfte zwischen Hefezellen und Polystyrolpartikeln resultiert aus deren unterschiedlichen Durchmessern und deren unterschiedlichen Hamaker Konstanten. Der theoretische Verlauf der Haftkraft kann in den gemessenen Trennkräften nachvollzogen werden.

### 5.1.4 Sonderstellung der Emaille-Oberfläche

In den Versuchen der Einzelpartikelablösung wurde neben Oberflächen aus PTFE, Edelstahl und dessen beschichteten Varianten auch Emaille als Werkstoff untersucht. Während die erstgenannten Oberflächen in einem Rauheitsbereich gleicher Größenordnung liegen und daher bei der Bewertung des Materialeinflusses gut vergleichbar sind, ist bei den emaillierten Oberflächen keine Trennung der Einflussgrößen möglich. Oberflächen aus Emaille konnten nicht in unterschiedlicher Rauheit produziert werden und keiner der verwendeten Werkstoffe hatte eine vergleichbare Rauheit.

In den Reinigungsversuchen zeigt Emaille trotz hoher Oberflächenenergie (Tabelle 4.3) Ergebnisse, die vergleichbar mit den mittleren Trennkräften auf niederenergetischen Oberflächen sind (Abbildung 5.21).

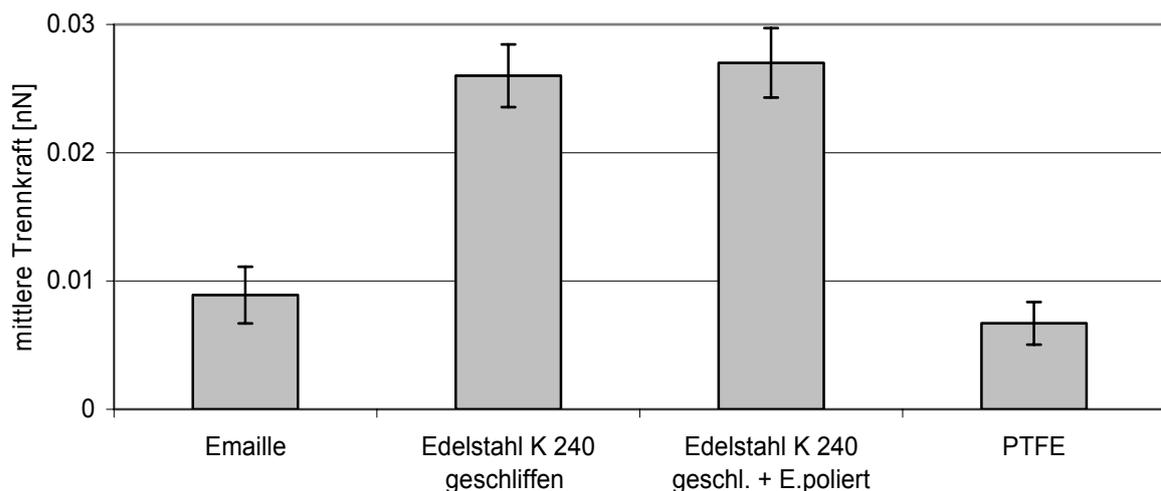


Abbildung 5.21: Vergleich der mittleren Trennkräfte von Polystyrolpartikeln ( $\varnothing 1,16 \mu\text{m}$ )

In Kapitel 5.1.1.2 wurden zwei Erklärungsansätze für die Ergebnisse der Einzelpartikelablösungen auf Edelstahl gegeben. Einerseits könnte bei den Versuchen mit Edelstahl jede der Oberflächenrauheiten in dem Bereich  $0,12 \mu\text{m} < R_a < 1,84 \mu\text{m}$  zu groß sein, um eine signifikante Rauheitsabhängigkeit messen zu können. Andererseits könnte eine überlagerte Nanorauheit ausschlaggebend für die Ergebnisse mit Edelstahl sein. Die Erklärung für die relativ niedrigen Trennkräfte der Polystyrolpartikeln auf der Emaille-Oberfläche kann nicht zweifelfrei gegeben werden. Emaille weist einen um eine Größenordnung verringerten  $R_a$ -Wert ( $R_a = 0,02 \mu\text{m}$ ) auf. Im Gegensatz zu Edelstahl besitzt Emaille

eine glasartige, glatte und geschlossene Oberfläche. Dagegen weist Emaille die höchste Oberflächenenergie der getesteten Werkstoffe auf. Auch wenn die polaren und dispersen Anteile der Oberflächenenergien der Werkstoffe mit einander verglichen werden, ändert sich diese Reihenfolge nicht.

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Reinigung wird in der Lebensmittel- und Pharmaindustrie aufgrund des stetig steigenden Kosten- und Zeitdrucks sowie der hohen Verbrauchererwartungen hinsichtlich Produktsicherheit und -haltbarkeit ein immer zentraleres Thema. Eine verbesserte Reinigbarkeit bedeutet für die produzierende Industrie eine Steigerung der Effizienz der Produktionsanlage. Besonders in der heutigen medienintensiven Zeit kommt ein „Lebensmittelskandal“ durch ein unsicheres Produkt einem finanziellen Desaster und immensem Imageverlust gleich. Aus diesem Grund ist die Reinigbarkeit der produktberührenden Oberflächen stets ein wichtiges Kriterium für die Werkstoffauswahl.

Basierend auf den Theorien zu Schmutzhaftung und -entfernung wurde im Rahmen dieser Arbeit überprüft, ob und wie die theoretisch relevanten Parameter auch in den Experimenten den Reinigungserfolg beeinflussen. Der Schwerpunkt wurde auf die Einflussgrößen des Werkstoffes gelegt, um herauszufinden, wie stark eine Oberfläche selbst zu ihrer Reinigbarkeit beitragen kann (self-cleaning).

Das Reinigungsergebnis wird jedoch nicht nur von der Werkstoffoberfläche, sondern auch von der Verunreinigung und dem Reinigungsmedium beeinflusst. Da jede dieser drei interagierenden Komponenten in unterschiedlicher Qualität und/oder Quantität vorliegen kann, ergibt sich eine Problemstellung mit einer theoretisch unendlich großen Matrix an verschiedenen Kombinationsmöglichkeiten. Aufgrund der hohen Anzahl an möglichen Einflussfaktoren ist der gezielten Variation von nur einem Parameter pro Versuchsreihe höchste Aufmerksamkeit gewidmet worden.

Diese unendliche Anzahl von Verschmutzungsfällen gestaltet eine pauschale Bewertung einzelner Parameter dementsprechend schwierig. Um eine Aussage über die Reinigbarkeit von Oberflächen für eine möglichst große Anzahl von Verschmutzungsfällen geben zu können, wurde eine Einteilung der potentiellen Verschmutzungen in drei repräsentative Gruppen getroffen, welche sich durch grundlegend unterschiedliche Ablöseverhalten auszeichnen:

- **partikuläre Verunreinigungen**, die eine Verschmutzung durch einzelne Zellen, Mikroorganismen oder Partikeln repräsentieren.
- **kohäsive Schmutzfilme**, die sehr resistent gegen das umgebende Medium sind und schwer zu reinigenden Kontaminationen entsprechen, wie z.B. Biofilme.
- **chemisch lösliche Schmutzfilme**, die zusammenhängende und flächendeckende Verschmutzungen darstellen, wie z.B. Produktreste der Lebensmittelindustrie.

Für die Reinigungsversuche wurden diese reproduzierbar hergestellt und eine optische Auswertung erarbeitet. Diese Verschmutzungen wurden auf unterschiedliche Werkstoffe unterschiedlicher Bearbeitungszustände aufgebracht und deren Reinigbarkeit im immmergierten System untersucht. Die variierten Parameter waren Oberflächenrauheit und Oberflächenenergie.

In den durchgeführten Versuchen hat sich gezeigt, dass die Oberflächenrauheit lediglich bei der Reinigung von kohäsiven Schmutzfilmen eine entscheidende Rolle gespielt hat. Hingegen ist ihr Einfluss auf das Reinigungsergebnis von sich auflösenden Schmutzfilmen und Partikeln nur begrenzt bis gar nicht zur Geltung gekommen. Das Oberflächenmaterial hatte keinen starken, aber dennoch signifikanten Einfluss auf die Reinigbarkeit der untersuchten Oberflächen. Dass die Reinigbarkeit einer Oberfläche keine Materialkonstante sein kann, wurde unter Verwendung spezieller Oberflächen mit definiert geätzten Rauheitsstrukturen nachgewiesen. Der Reinigungserfolg hängt immer auch von der Verunreinigungsart ab, was sich auch in vergleichbaren Versuchen der Einzelpartikelablösung mittels AFM in dem Einfluss der Elastizität bzw. Plastizität der Partikeln geäußert hat [1].

Praxistaugliche Empfehlungen gehören mit zu den wichtigsten Zielen dieser Arbeit gewesen. Mit Fokus auf die Oberflächenparameter und auf Basis der durchgeführten Untersuchungen kann zur Optimierung der Reinigung produktberührender Oberflächen folgende Checkliste als Orientierungshilfe dienen:

- Zur Verbesserung des Reinigungsergebnisses muss stets das gesamte System „Kontamination – Medium – Oberfläche“ betrachtet werden. Aussagen über die Auswirkung eines Oberflächenparameters ohne Kenntnis der Verunreinigungsart sind nicht zielführend.
- Im Falle partikulärer Verunreinigungen determiniert die Struktur einer Oberfläche und deren Größenverhältnis zur Partikelgröße den Reinigungserfolg stärker als ein Rauheitskennwert (üblicherweise  $R_a$ ).
- Im Falle von Schmutzfilmen hängt der Einfluss der Oberflächenrauheit von der Art der Reinigung ab. Während bei der „schmutzauflösenden“ Reinigung lediglich ein tendenzieller Einfluss erst bei Rauheiten  $R_a > 1 \mu\text{m}$  festgestellt werden konnte, hängt der Reinigungserfolg bei einer „ablösenden“ Reinigung deutlicher von der Rauheit des Werkstoffes ab.
- Oberflächen mit geringer Oberflächenenergie zeigten bessere Reinigbarkeiten als vergleichbare hochenergetische Oberflächen.

Ist die Verunreinigungsart dennoch unbekannt, so sollte der „Grenzwert“ von  $R_a = 1 \mu\text{m}$  unterschritten werden, um bei Vorhandensein filmartiger Verschmutzungen keine negativen Auswirkungen auf die Reinigbarkeit zu haben. Die Notwendigkeit nach hochpolierten Oberflächen ( $R_a < 0,3 \mu\text{m}$ ) aus Reinigbarkeitsgründen kann aufgrund der Untersuchungen nicht nachvollzogen werden.

Wie in dieser Arbeit sollte auch in weiteren Arbeiten ebenfalls streng zwischen Grundlagenforschung und praxisbezogener Forschung unterschieden werden. Die Komplexität realer Werkstoffoberflächen ist aufgrund ihrer Inhomogenität sehr hoch. Dies wirkt sich v.a. auf die Einzelpartikelablösung aus, da hier der Unterschied zwischen makroskopischen Oberflächenkenngrößen und mikroskopischen Adhäsionsproblemen am deutlichsten wird. Für direkte Fragestellungen zur Optimierung der Reinigbarkeit in definierten Verunreinigungsfällen stellt der entwickelte Strömungskanal in Labormaßstab ein sehr gutes Messinstrumentarium dar, um relevante Einflussgrößen zu identifizieren und ein effizient aufeinander abgestimmtes Reinigungsprogramm zu entwickeln. Besonders die Frage, ob die Auswirkung der Veränderung vieler Parameter gleich der Summe der Einzeleinflüsse ist, könnte für einen speziellen industriellen Anwendungsfall von hohem Interesse sein. Eine genaue Abstimmung auf optimal wirkende Reinigungsmittel ist damit möglich. Dieser Versuchsaufbau steht am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde weiterhin zur Verfügung und kann für wissenschaftliche Untersuchungen oder als Dienstleistung verwendet werden.

Mit definierten Oberflächen kann auf Basis der erlangten Ergebnisse weiter grundlegenden Fragestellungen nachgegangen werden. Auf dem Gebiet der Partikelhaftung und der Reinigung wäre interessant, ob eine kritische Härte in Abhängigkeit der Partikelgröße gefunden werden kann, bei deren Unterschreitung - allein durch die wirkenden Haftkräfte - mit einer plastischen Verformung und deswegen mit Haftkraftsteigerung zu rechnen sein muss.

Aus den Ergebnissen mit definierten Oberflächenstrukturen hat sich gezeigt, dass die Strömung im wandnahen Bereich für die Reinigung weiterhin ein nicht vollständig erforschtes Gebiet darstellt. Kenntnisse über den Zustand des Strömungsprofils bei dem Um- oder Überströmen von Mikro- und Nanostrukturen kann nicht nur für die Partikelablösung, sondern auch für andere Prozesse wie den Wärmeübergang oder Abscheidungsvorgänge von äußerstem Interesse sein.

## 7 Summary

As in most branches the food and the pharmaceutical industry have to deal with the pressure of costs and of time. As the cleaning step is reducing the time for production and as it is often very expensive, too, cleaning should be reduced to the minimum for a maximum of productivity. On the other hand side the demands of the consumer on product safety and shelf life are rising and the cleaning step has to assure a well working plant and a safe product at the end of the line. A public affair because of an unsafe or even contaminated product will lead a company to a dramatic drop of image and turnover.

Therefore cleaning is an important field of the whole production. Additionally to the own interest in a safe production, which every company should have, there are legal requirements as well as guidelines for a safe way of producing and for the equipment that is allowed for use in food and drug production. In the course of these requirements also any surface which can get into contact with the product during the production process has to fulfil demands concerning its cleanability. These requirements do not always have a scientific background but fulfilling them means often an economic effort.

The aim of this work was therefore to investigate the influence of the topometrical parameters on the cleanability of technical surfaces. For any company in the branch of the food and pharmaceutical industry it would be great benefit to know what makes a surface easy to clean or not. Based on the theories of adhesion and detachment of bodies the theoretical parameters are tested concerning their practical impact on the cleaning result. This comparison should show, which parameters of the surface have to be adjusted for an optimised cleaning or which parameters of the surface enhance a self-cleaning behaviour.

The surface, the cleaning media and the soiling interact with each other and the technical surface is not the only determining factor for the cleaning result. As each of those three partners could vary in different parameters, an endless matrix of combinations would result. Therefore regulations for each interacting partner have to be made.

In this work the main focus is on surfaces relevant for the industrial application. Thus stainless steel with different grinded and/or electro polished finishes is the most studied surface. Additionally enamel and PTFE surfaces are tested. For having special conditions during the experiments, some other tailor-made surfaces become produced, too.

Different ways of cleaning are expected for different soilings. Therefore all possible soilings have to become classified concerning their cleaning behaviour. The used classes are:

- **Particle contaminations**, which are not soluble and have to be detached by external force (e.g. cells, micro-organisms, crystals, particles)
- **Cohesive soiling-layers**, which are not soluble and have to be detached by external force (e.g. resistant foulings like biofilms)
- **Soluble soiling-layers**, which are soluble in the cleaning fluid and can be removed by diffusion into the fluid (e.g. residues of food production)

For each class a reproducible soiling and an optical analysing procedure was developed for the cleanability tests. These experiments are just made in the immersed system. As CIP-cleaning is the choice for all big industrial applications, water is always the surrounding medium during cleaning (and not air). That's the reason why tap water is the fluid for these investigations. The surface parameters of interest have been the surface roughness ( $R_a$ ) and the surface energy.

The experiments showed that surface roughness had no effect on the cleanability when single particles have been the soiling. Much more important than the  $R_a$ -value is the size ratio between the roughness and the particles. This proved that cleanability can't be a material constant but has to become discussed with respect to the existing soiling.

With cohesive soilings there was an influence of roughness due to the increasing contact area with increasing roughness. This is according to the theoretical model of the Van der Waals force (plate-plate model). For soluble soilings a "critical" roughness for the cleanability of the surface was found. When roughness exceeded a value of  $R_a = 1 \mu\text{m}$  the residue area increased. For lower values  $R_a < 1 \mu\text{m}$  no dependence of the surface cleanability on the roughness was found.

In the test of the surface material (= surface energy) the low energetic surfaces had a better cleanability than the high energetic surfaces.

For a better cleaning the following check-list can be helpful:

- For improving the cleaning the total system of surface, cleaning fluid and soiling must be regarded.
- For a particle soiling the roughness structure and its size ratio to the particles is more important for cleanability than any roughness value.

- 
- In case of soiling layers the roughness influence depends on the kind of cleaning mechanism. For detaching a non-soluble soiling by wall shear stress the roughness is effecting the force required and therefore the cleanability of the surface. For a soluble soiling an increasing roughness seems to decrease the mass transport during cleaning for values  $R_a > 1 \mu\text{m}$ .
  - Low energetic surfaces had a better cleanability than high energetic surfaces.

If the kind of contamination and cleaning mechanism is still unknown, this surface finish has to be chosen which had a good cleanability with all three classes of soilings. In that case it would be important to get the surface roughness below  $R_a = 1 \mu\text{m}$ . Under that value no dramatic effects of roughness had been detected. On the base of these results, the need for high polished surface (e.g.  $R_a < 0,3 \mu\text{m}$ ) can't be seen for cleanability reasons.

## 8 Literaturverzeichnis

- [1] AiF-Abschlussbericht: Nanotechnologische Entwicklung von „easier-to-clean“-Oberflächenstrukturen für eine zukünftig gesteigerte Lebensmittel- und Produktsicherheit. Projekt Nr. AiF 210 ZN III (2008)
- [2] AiF-Abschlussbericht: Klassierung feinstdisperser Teilchen durch Sedimentation im Zentrifugalfeld bei höheren Konzentrationen. Projekt Nr. 13690 N/1, Institut für mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik, Universität Karlsruhe (2006)
- [3] ATKINS, P. W.: Atkin's physical chemistry, 8. Edt., Oxford Univ. Press, Oxford (2006)
- [4] BAIER, R.E.: Adsorption of Microorganisms to Surfaces. Wiley-Interscience Publishers, New York (1980).
- [5] BAIER, R.E., MEYER, A.E., DEPALMA, V.A., KING, R.W., FORMALIK, M.S.: Surface microfouling during the induction period. J. Heat Transfer, Vol. 105, S. 618–624 (1983)
- [6] BARTHLOTT, W., NEINHUIS, C.: Purity of the sacred lotus, or escape from contamination in biological surfaces, *Planta*, Vol. 202, (1997), S. 1–8
- [7] BAYOUDH, S., PONSONNET, L., BEN OUADA, H., BAKHROUF, A., OTHMANE, A.: Bacterial detachment from hydrophilic and hydrophobic surfaces using a microjet impingement. *Colloids Surf.*, 266, S. 160-167 (2005)
- [8] BENEZECH, T. et al: A method for the assessment of in-place cleanability of food processing equipment, EHEDG Doc. 2, 3<sup>rd</sup> Edition, (2004).
- [9] BORHO, K., POLKE, R., WINTERMANTEL, K.: Product Properties and Process Engineering. BASF-Video-Tutorial, S. 14-24 (1993)
- [10] BOWLING, R. A.: A Theoretical Review of Particle Adhesion. In: MITTAL, K. L. (Hrsg.): *Particles on Surfaces 2: Detection, Adhesion, and Removal*. Plenum Press, New York (1988)
- [11] BRAUER, H.: Stoffaustausch einschließlich chemischer Reaktionen, Sauerländer, Frankfurt (1971)
- [12] BUTT, H.-J., CAPPELLA, B., KAPPL, M.: Force measurements with the atomic force microscope: technique, interpretation and applications. *Surf. Sci. Rep.*, Vol. 59, S. 1-152 (2005)
- [13] BUTT, H.-J., GRAF, K., KAPPL, M.: *Physics and Chemistry of Interfaces*. 2. Aufl., Wiley VCH Verlag, Weinheim (2006)
- [14] BUTT, H.-J., BERGER, R., BONACCURSO, E., CHEN, Y., WANG, J.: Impact of atomic force microscopy on interface and colloid science. *Adv. Colloid Interface Sci.*, Vol. 133, S. 91-104 (2003)

- 
- [15] CERSOVSKY, H., NEUBERT, S.: Die Reinigung und Desinfektion von Anlagen, Geräten und Gefäßen in der landwirtschaftlichen Milchwirtschaft, Arbeiten des Instituts für Milchforschung, Oranienburg (1966)
- [16] CHANGANI, S.D., BELMAR-BEINY, M.T., FRYER, P.J.: Engineering and chemical factors associated with fouling and cleaning in milk processing, *Exp. Therm. Fluid Sci.*, Vol. 14, (1997), S. 392–406
- [17] CHEN, M.J., ZHANG, Z., BOTT, T.R.: Direct measurement of the adhesive strength of biofilms in pipes by micromanipulation. *Biotechnol. Tech.*, Vol. 12, (1998), S. 875 – 880
- [18] CLEAVER, J. W.; YATES, B.: Mechanism of Detachment of Colloidal Particles from a Flat Substrate in a Turbulent Flow. *J. Colloid Interface Sci.* 44 , Nr. 3, S.464-474 (1973)
- [19] CUSSLER, E.L.: *Diffusion - Mass Transfer in Fluid Systems*, Second Edition, Cambridge University Press (1997)
- [20] DALTON, H.M., MARCH, P.E.: Molecular genetics of bacterial attachment and biofouling, *Environ. Biotech.*, Vol. 9, S. 252-255 (1998)
- [21] DEAMRE, S., LABRAGA, L., TOURNIER, C.: Comparison and Scaling of the Bursting Period in Rough and Smooth Walls Channel Flows. *J. Fluids Eng.* 121, Nr. 4, S.735-747 (1999)
- [22] DERJAGUIN, B. V.; MÜLLER, V. M.; TOPOROV, Y. P.: Effect of contact deformations on the adhesion of particles. In: *J. Colloids Interface Sci.* 53, Nr. 2, S. 314–326 (1975)
- [23] DIN - Deutsches Institut für Normung: *Nahrungsmittelmaschinen - Allgemeine Gestaltungsleitsätze - Teil 2: Hygieneanforderungen.* DIN EN 1672-2, Beuth Verlag, Berlin (2005b)
- [24] DIN - Deutsches Institut für Normung: *Ermittlung der Rauheitskenngrößen  $R_a$ ,  $R_z$  und  $R_{max}$  mit elektrischen Tastschnittgräten, Begriffe, Messbedingungen.* DIN 4768, Beuth Verlag, Berlin (1990)
- [25] DIN - Deutsches Institut für Normung: *Stoffübertragung - Diffusion und Stoffübergang, Grundbegriffe, Größen, Formelzeichen, Kenngrößen.* DIN 5491, Beuth Verlag, Berlin (1970)
- [26] DIN - Deutsches Institut für Normung: *Lebensmittelhygiene - Reinigung und Desinfektion.* DIN 10516, Beuth Verlag, Berlin (2001)
- [27] DIN - Deutsches Institut für Normung: *Milchwirtschaftliche Maschinen in Molkereibetrieben, Tanks und Apparate, Oberflächen.* DIN 11480, Beuth Verlag, Berlin (1992)
- [28] DIN - Deutsches Institut für Normung: *Sicherheit von Maschinen - Hygieneanforderungen an die Gestaltung von Maschinen.* DIN EN ISO 14159, Beuth Verlag, Berlin (2004)

- 
- [29] DIN - Deutsches Institut für Normung: Managementsysteme für die Lebensmittelsicherheit - Anforderungen an Organisationen in der Lebensmittelkette. DIN EN ISO 22000, Beuth Verlag, Berlin (2005a)
- [30] EHEDG Update: A method for assessing the in-place cleanability of food processing equipment. Trends Food Sci. Tech., Vol. 18, S. 52-63 (2007)
- [31] EINSTEIN, A.: Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen, Annalen der Physik, 17, S. 549–560 (1905)
- [32] FICK, A.: Über Diffusion, Poggendorff's Annalen der Physik, 94, 59–86 (1855)
- [33] FLEMMING, H.-C.: Biofouling in industrial Systems. In: BITTON, G. (Hrsg.): Encyclopedia of Environmental Microbiology, Vol. 2, S. 619-632 (2002)
- [34] FLINT, S.H., BROOKS, J.D., BREMER, P.J.: Properties of the stainless steel substrate, influencing the adhesion of thermo resistant streptococci, J. Food Eng., Vol. 43, S. 235-242 (2000)
- [35] FÖRSTER, M., AUGUSTIN, W., BOHNET, M.: Influence of the adhesion force crystal/heat exchanger surface on fouling mitigation. Chem. Eng. Process. 38, 449–461 (1999)
- [36] FÖRSTER, M., BOHNET, M.: Modification of molecular interactions at the interface crystal/heat transfer surface to minimize heat exchanger fouling. J. Therm. Sci. Technol., Vol. 39, S. 697-708 (2000)
- [37] GALLARO-MORENO, A.M., GONZALES-MARTIN, M.L., BRUQUE, J.M., PEREZ-GIRALDO, C.: The adhesion strength of Candida Parapsilosis to glass and silicone as a function of hydrophobicity, roughness and cell morphology, Colloids Surf., Vol. 249, S. 99-103 (2004)
- [38] GILLHAM, C.R., FRYER, P.J., HASTING, A.P.M., WILSON, D.I.: Enhanced cleaning of whey protein soils using pulsed flows, J. Food Eng., Vol. 46, (2000), S. 199 – 209
- [39] GÖTZINGER, M., PEUKERT, W.: Dispersive forces of particle–surface interactions: direct AFM measurements and modelling. Powder Technol., Vol. 130, S. 102-109 (2003)
- [40] GÖTZINGER, M., PEUKERT, W.: Particle adhesion force distributions on rough surfaces. Langmuir, Vol. 20, S. 5298-5303 (2004)
- [41] GOOD, R. J., CHAUDHURY, M. K.: Theory of Adhesive Forces Across Interphases: The Lifshitz-van der Waals Component of Interaction and Adhesion. In: LEE, L.-H. (Hrsg.): Fundamentals of Adhesion. Plenum Press, New York (1991)
- [42] GRAHAM, T.: On the Law of the Diffusion of Gases, Philos. Mag., 2, S. 175–190 (1833)

- 
- [43] GRAßHOFF, A.: Die örtliche Flüssigkeitsbewegung und deren Einfluss auf den Reinigungsprozess in zylindrischen Toträumen. Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte, Nr. 325(4), S. 471-492 (1983)
- [44] GRAßHOFF, A.: Toträume in CIP-gereinigten Rohrleitungssystemen. Dtsch. Milchwirtschaft, Nr. 13, S. 407-414 (1983)
- [45] GRASSHOFF, A.: Cleaning of heat treatment equipment, Fouling and Cleaning in heat treatment equipment, IDF Monograph No. 328, S. 32-44 (1997)
- [46] GREENWOOD, J. A.; JOHNSON, K. L.: The mechanics of adhesion of viscoelastic solids. *Phil. Mag. A*, Nr. 3, Vol. 43, S. 697-711 (1981)
- [47] HEIM, L.-O., BLUM, J., PREUSS, M., BUTT, H.-J.: Adhesion and Friction between Spherical Micrometer-Sized Particles. *Phys. Rev. Let.*, Nr. 16, Vol. 83, S. 3328-3331 (1999)
- [48] HERTZ, H.: Über die Berührung fester elastischer Körper. In: *Journal für die reine und angewandte Mathematik*, Band 92, S. 156-171 (1882)
- [49] HERTZ, H.: *Gesammelte Werke*. Barth Verlag, Leipzig (1895)
- [50] HOFFMANN, W.: Zirkulationsreinigen CIP von geraden Rohren. Dissertation, Bundesanstalt für Milchforschung, Institut für Verfahrenstechnik, Kiel (1983)
- [51] HOFMANN, J.: Stoffübergang bei der Reinigung als Qualifizierungsmethode der Reinigbarkeit, Dissertation, Technische Universität München (2007)
- [52] HUBBE, M. A.: Theory of Detachment of Colloidal Particles from Flat Surfaces Exposed to Flow. *Colloids Surf.*, Vol. 12, S. 151-178 (1984)
- [53] ISRAELACHVILI, J. N.: Adhesion Forces between Surfaces in Liquids and Condensable Vapours. *Surf. Sci. Rep.*, Vol. 14, S.109-159 (1992)
- [54] ISRAELACHVILI, J.: *Intermolecular & Surface Forces*, 2. Edt, Academic Press, London (1998)
- [55] JACOBASCH, H.-J.: *Oberflächenchemie faserbildender Polymere*. Akademie-Verlag, Berlin (1984)
- [56] JENSEN, B. B. B., FRIIS, A.: Predicting the Cleanability of Mix-Proof Valves by use of Wall Shear Stress. *Journal Food Process Eng.*, Vol. 28(2), S. 89-106 (2005)
- [57] JOHNSON, K. L.; KENDALL, K.; ROBERTS, A. D.: Surface energy and the contact of elastic solids. *Proc. R. Soc. Lond. A* 324, Nr. 1558, S. 301-313 (1971)
- [58] JOHNSON, K. L.: *Contact mechanics*. Cambridge: Cambridge University Press, 1985
- [59] JOHNSON, K. L.; GREENWOOD, J. A.: An adhesion map for the contact of elastic spheres. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol. 192, S. 326-333 (1997)

- 
- [60] KESSLER, H.G.: Lebensmittel- und Bioverfahrenstechnik – Molkereitechnologie, Verlag A. Kessler, München (1996)
- [61] KESSLER, G.H., LUND, D.B.: Fouling and Cleaning in food processing, Proceedings, Piren, (1989)
- [62] KHILNANI, A.: Cleaning Semiconductor Surfaces: Facts and Foibles. In: MITTAL, K. L. (Hrsg.): Particles on Surfaces 1: Detection, Adhesion, and Removal. Plenum Press, New York (1986)
- [63] KIERMEIER, F., WILDBRETT, G.: Kontrolle von Reinigungsmitteln und Reinigung in der Milchwirtschaft. Milchwissenschaft, Band 12, S. 310-321 (1957)
- [64] KÖHLER, U.: Entwicklung eines Meßverfahrens (PIV) zur Untersuchung von Partikelbewegungen in wandnahen turbulenten Strömungen. Dissertation, Technische Universität Clausthal, Fakultät für Bergbau, Hüttenwesen und Maschinenwesen, (2000)
- [65] KÖRSTGENS, V., BORCHARD, W., WINGENDER, J., FLEMMING, H.-C.: Bestimmung der mechanischen Stabilität von Biofilmen, Biospektrum, Vol. 7, S. 333-335 (2001)
- [66] KOGLIN, B.: Systematik der Dispergiermittel. Chem. Ing. Tech. 46, Nr. 17, S. 720-725 (1974)
- [67] KOHLER, W.: Materialoberflächen und Reinigbarkeit. In: KOHLER, W., SCHMIDT, R, (Hrsg.): Materialoberflächen in der Reinraum- und Steriltechnik. VDMA-Verlag, Frankfurt a.M. (2005)
- [68] KREYSZIG, E.: Statistische Methoden und ihre Anwendung. 7. Aufl., Vandenhoeck & Rupprecht Verlag, Göttingen (1975)
- [69] KRISHNA, R., WESSELINGH, J. A.: The Maxwell-Stefan approach to mass transfer. Chem. Eng. Sci., 52(6), 861-911 (1997)
- [70] KRUPP, H.: Particle Adhesion: Theory and Experiment. Adv. Colloid Interface Sci. 1, Vol. 2, S.111-239 (1967)
- [71] KWOK, D. Y.; NEUMANN, A. W.: Contact Angle Measurement and Contact Angle Interpretation. Adv. Colloid Interface Sci. 81, Vol. 3, S. 167-249 (1999)
- [72] LIFSHITZ, E. M.: The Theory of Molecular Attractive Forces between Solids. Soviet Physics 2, Nr. 1, S.73-83 (1956)
- [73] LAGALY, G., SCHULZ, O., ZIMEHL, R.: Dispersionen und Emulsionen: eine Einführung in die Kolloidik feinverteilter Stoffe einschließlich der Tonminerale. Steinkopff Verlag Darmstadt (1997)
- [74] LANGEVELD, L. P. M., BOLLE, A. C., VEGETER, J. E.: The cleanability of stainless steel with different degrees of surface roughness. Netherland Milk Dairy Journal, Vol. 26, S. 145-149 (1972)

- 
- [75] LIU, W., CHRISTIAN, G. K., ZHANG, Z., FRYER, P. J.: Direct measurement of the force required to disrupt and remove fouling deposits of whey protein concentrate. *Int. Dairy Journal*, Vol. 16, S. 164-172 (2006)
- [76] LONDON, F.: Zur Theorie und Systematik der Molekularkräfte. *Zeitschrift für Physik* 63, S. 245-279 (1930)
- [77] LYKLEMA, J.: Elektrische Doppelschichten: Elektrostatik und Elektrodynamik. *Chem. Ing. Tech.* 71, Nr. 12, S. 1364-1369 (1999)
- [78] LYKELMA, J.: *Fundamentals of Interface and Colloid Science. Volume 1: Fundamentals.* London: Academic Press (2000)
- [79] MASCHINENRICHTLINIE: „Richtlinie 98/37/EG des europäischen Parlaments und Rates vom 22. Juni 1998 zur Angleichung der Rechts- und Verwaltungs-vorschriften der Mitgliedstaaten für Maschinen.“ 98/37/EG, EU (1998)
- [80] MAUGIS, D.: Adherence of solids: mechanical aspects. *Revue de Metallurgie* 94 (1997), Nr. 5, S. 655–690
- [81] MCLAUGHLIN, J.B.: The lift on a small sphere in wall bounded linear shear flows. *J. Fluid Mech.* Vol. 246, 249-256 (1993)
- [82] MITTAL, K.L.: Surface contamination: an overview. In: MITTAL, K.L.(Hrsg.): *Surface contamination*, Vol. 1, Plenum Press, New York (1979)
- [83] MOSER, S.: Van der Waals- und elektrostatische Haftkräfte, Dissertation, Universität Karlsruhe (1976)
- [84] MOSER, S., SOMMER, K.: Calculation of van der Waals Forces in Adhering Systems. *Powder Technol.* 17, Vol. 2, S.191-195 (1977)
- [85] MÜLLER, R. H.: Zetapotential und Partikelladung in der Laborpraxis: Einführung in die Theorie, praktische Messdurchführung, Dateninterpretation. Band 37. Stuttgart: Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft (1996)
- [86] MÜLLER, V. M.; DERJAGUIN, B. V.; TOPOROV, Y. P.: On two methods of calculation of the force of sticking of an elastic sphere to a rigid plane. *Colloids Surf.* 7, Vol. 3, S. 251–259 (1983)
- [87] MYERS, D.: *Surfaces, Interfaces, and Colloids: Principles and Applications.* 2. Aufl. Wiley-VCH, New York (1999)
- [88] NEY, P.: *Zetapotentiale und Flotierbarkeit von Mineralien.* Springer Verlag, Wien New York (1973)
- [89] NITSCHKE, W.: *Strömungsmesstechnik.* Berlin: Springer (1994)
- [90] OWENS, N. F.; GINGELL, D.: Inhibition of Cell Adhesion by a Synthetic Polymer Adsorbed to Glass Shown under Defined Hydrodynamic Stress. *J. Cell Sci.* 87, Vol. 5, S.667-675(1987)

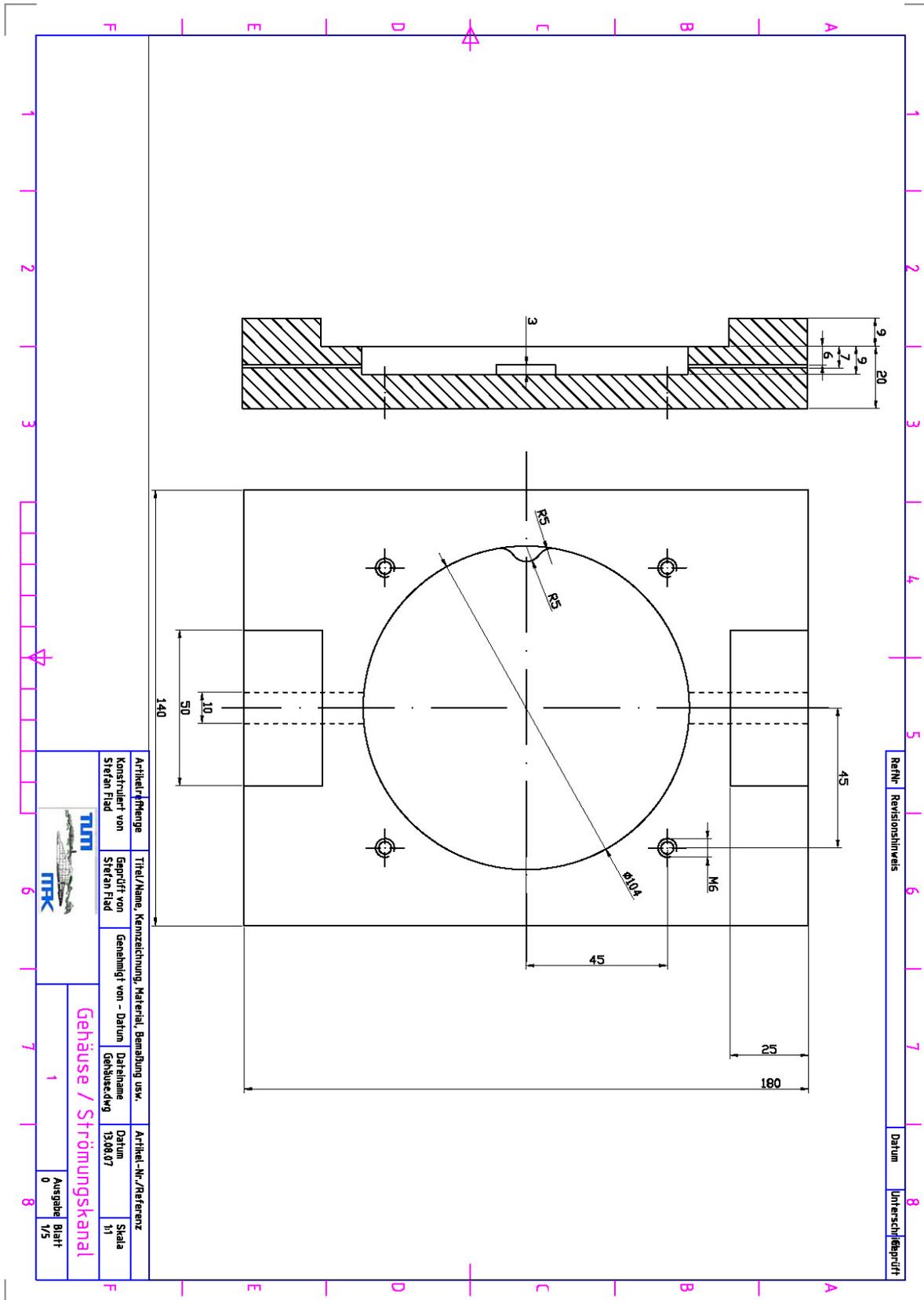
- [91] PERVUSHIN, K.: Partielle Enzymhemmung, Eidgenössische Technische Hochschule Zürich  
([www.bionmr.phys.chem.ethz.ch/PC/data\\_export/kin\\_9.pdf](http://www.bionmr.phys.chem.ethz.ch/PC/data_export/kin_9.pdf))
- [92] PETERMEIER, J.: Numero-Fuzzy Modell zur Beschreibung des Fouling bei der Erhitzung von Milch, Technische Universität München, Dissertation (2003)
- [93] POULSEN, L.V.: Microbial biofilm in food processing, Lebensmittelwissenschaft und -Technologie, Band. 32, S. 321-326 (1999)
- [94] RABINOVICH, Y. I., ADLER, J. J., ATA, A., SINGH, R. K., MOUDGIL, B. M.: Adhesion between Nanoscale Rough Surfaces: I. Role of Asperity Geometry. *J. Colloid Interface Sci.* 232, Vol. 1, S. 10-16 (2000)
- [95] RABINOVICH, Y. I., ADLER, J. J., ATA, A., SINGH, R. K., MOUDGIL, B. M.: Adhesion between Nanoscale Rough Surfaces: II. Measurement and Comparison with Theory. *J. Colloid Interface Sci.* 232, Vol. 1, S. 17-24 (2000)
- [96] RANADE, M. B.; MENON, V. B.; MULLINS, M. E.; DEBLER, V. L.: Adhesion and Removal of Particles. In: MITTAL, K. L. (Hrsg.): *Particles on Surfaces 1: Detection, Adhesion, and Removal*. Plenum Press, New York (1986)
- [97] REIFF, F.: Reinigungs- und Desinfektionsmittel im Lebensmittelbetrieb. In: SCHORMÜLLER, J. (Hrsg.): *Handbuch der Lebensmittelchemie*. Band 9, Springer Verlag, Berlin (1970)
- [98] REINHARDT, A.: Reinigungs- und Desinfektionsverfahren, Getreide, Mehl, Brot, Band 27, S. 381-385 (1973)
- [99] REYNOLDS, O.: On the experimental investigation of the circumstances which determine whether the motion of water shall be direct or sinuous, and the law of resistance in parallel channels. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, Vol. 174, S. 935-982 (1883)
- [100] RUBIN, G.: Widerstands- und Auftriebsbeiwerte von ruhendem kugelförmigem Partikel in instationären, wandnahen laminaren Grenzschichten. Dissertation. TH Karlsruhe (1977)
- [101] RUMPF, H.: Über das Ansetzen fein verteilter Stoffe an den Wänden von Strömungskanälen. *Chem. Ing. Tech.* 25, Nr. 6, S. 317-327 (1953)
- [102] RUMPF, H., SOMMER, K., STEIER, K.: Mechanismen der Haftkraftverstärkung bei der Partikelhaftung durch plastisches Verformen, Sintern und viskoelastisches Fließen. *Chem. Ing. Tech.* 48, Nr. 4, S. 300-307 (1976)
- [103] RUMPF, H.: Particle Adhesion. In: SASTRA, K. V. S. (Hrsg.): *Agglomeration*. American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers, S. 97-129, New York (1977)

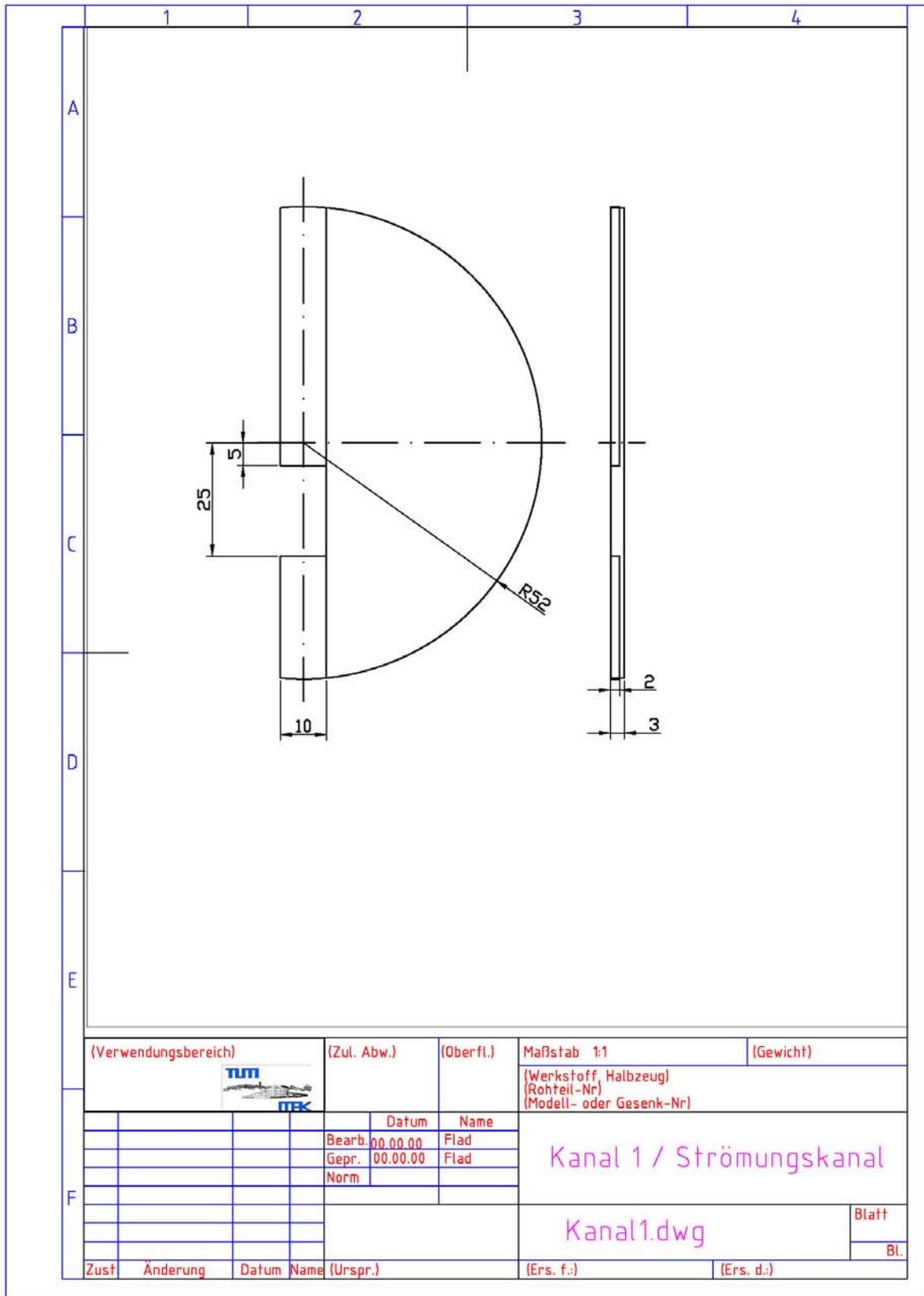
- 
- [104] SAFFMANN, P.G.: The lift on a small sphere in a slow shear flow. *J. Fluid Mech.* Vol. 22, S. 385-400 (1965)
- [105] SAFFMANN, P.G.: The lift on a small sphere in a slow shear flow. *J. Fluid Mech.* Vol. 31, S. 624 (1968)
- [106] SAIKHWAN, P., GEDDERT, T., AUGUSTIN, W., SCHOLL, S., PATERSON, W.R., WILSON, D.I.: Effect of surface treatment on cleaning of a model food soil. *Surf. Coat. Technol.*, Vol. 201, S. 943-951 (2006)
- [107] SCHLEGEL, H.G.: *Allgemeine Mikrobiologie*, Aufl. 7, Thieme Verlag, Stuttgart, New York (1992)
- [108] SCHLÜNDER, E.-U.: *Einführung in die Stoffübertragung*. 2. Auflage, Vieweg Verlag, Braunschweig (1996)
- [109] SCHMIDT, R.: *Werkstoffverhalten in biologischen Systemen: Grundlagen, Anwendungen, Schädigungsmechanismen, Werkstoffprüfung*. 2. Aufl., Springer, Berlin (1999)
- [110] SCHMIDT, U., LEISTNER, L.: *Reinigung und Desinfektion in der Fleischwirtschaft*. In: SCHLIESSER, Th., STRAUCH, D., (Hrsg.): *Desinfektion in der Tierhaltung, Fleischwirtschaft und Milchwirtschaft*, Enke Verlag, Stuttgart (1981)
- [111] SCHUBERT, H.: *Grundlagen des Agglomerierens*, *Chem. Ing. Tech.* 51, Nr. 4, S. 266-277 (1979)
- [112] SCHULTE, S., WINGENDER, J., FLEMMING, H.-C.: *Efficacy of biocides against biofilms. Directory of microbicides for the protection of materials*, Springer Verlag, Dordrecht, Niederlande (2005)
- [113] SHERWOOD, T. K., PIGFORD, R. L., WILKE, C. R.: *Mass transfer*, McGraw-Hill, Inc., United States of America (1975)
- [114] SNEDDON, I. N.: The relation between load and penetration in the axisymmetric Boussinesq problem for a punch of arbitrary profile. *Int. J. Eng.*, Vol. 3, S. 47-57 (1965)
- [115] STERN, O.: Zur Theorie der elektrolytischen Doppelschicht. *Zeitschrift für Elektrochemie* 30, S. 508-516 (1924)
- [116] STRATHMANN, M.: *Visualisierung und Charakterisierung von extrazellulären polymeren Substanzen in Biofilmen*. Dissertation, Universität Duisburg-Essen, Der Andere Verlag, Osnabrück (2003)
- [117] TRUCKENBRODT, E.: *Grundlagen und elementare Strömungsvorgänge dichtebeständiger Fluide*. *Fluidmechanik*. Band 1, 2. Auflage, Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York (1980)
- [118] VAN OSS, C. J., NEUMANN, A. W., OMENYI, S. N., ABSOLOM, D. R.: Repulsive van der Waals Interactions: Their Role in Various Separation Methods. *Sep. Purif. Methods* 7, Nr. 2, S. 245-271 (1978)

- 
- [119] VDI-WÄRMEATLAS, Ga: Wärmeübertragung bei der Strömung durch Rohre, Springer Verlag Berlin Heidelberg (2002)
- [120] VDMA-Einheitsblatt Nr. 24 432: Komponenten und Anlagen für keimarme oder sterile Verfahrenstechniken – Qualitätsmerkmale und Empfehlungen. Beuth Verlag, Berlin (1992)
- [121] VISSER, J.: On Hamaker Constants: A comparison between Hamaker constants and Lifshitz-Van der Waals constants. In: OVERBEEK, J., PRINS, W., ZETTLEMAYER, A.C. (Hrsg.): Adv. Colloid Interface Sci., Elsevier, Amsterdam (1972)
- [122] VISSER, J.: Adhesion of Colloidal Particles. In: Matjjevic, E. (Hrsg): Surface and Colloid Science. New York, Wiley, S.91 (1976)
- [123] VISSER, J.: An Invited Review: Van der Waals and Other Cohesive Forces Affecting Powder Fluidization. Powder Technol. 58, Nr. 1, S. 1-10 (1989)
- [124] VISSER, J.: Particle Adhesion and Removal: A Review. Part. Sci. Technol., Vol. 13, S. 169-196 (1995)
- [125] WEIGL, B.: Trennkräfte zwischen Mikroorganismen, Partikeln und Oberflächen, Dissertation, Technische Universität München (2003)
- [126] WEIGL, J.: Elektrokinetische Grenzflächenvorgänge. New York: Verlag Chemie, (1977)
- [127] WELCHNER, K.: Zum Ausspülverhalten hochviskoser Produkte aus Rohrleitungen – Wechselwirkungen zwischen Produkt und Spülfluid, Dissertation, Technische Universität München (1993)
- [128] WESSELINGH, J. A., KRISHNA, R.: Mass Transfer, Ellis Horwood Ltd., Chichester, England (1990)
- [129] WESSELINGH, J. A., KRISHNA, R.: Mass transfer in multicomponent mixtures, 1. ed. Ed., Delft University Press, Delft (2000)
- [130] WILDBRETT, G.: Reinigung und Desinfektion in der Lebensmittelindustrie, Behr's Verlag, Hamburg (1996)
- [131] ZIEREP, J.: Grundzüge der Strömungslehre, 2. Ed., G. Braun, Karlsruhe (1982)
- [132] ZHAO, Q., LIU, Y., WANG, C., WANG, S., MÜLLER-STEINHAGEN, H.: Effect of surface free energy on the adhesion of biofouling and crystalline fouling, Chem. Eng. Sci., Vol. 60, S. 4858–4865 (2005)
- [133] ZHOU, HB., PEUKERT, W.: Modeling adhesion forces between deformable bodies by FEM and hamaker summation. Langmuir 4, Vol. 24, S. 1459-1468 (2007)

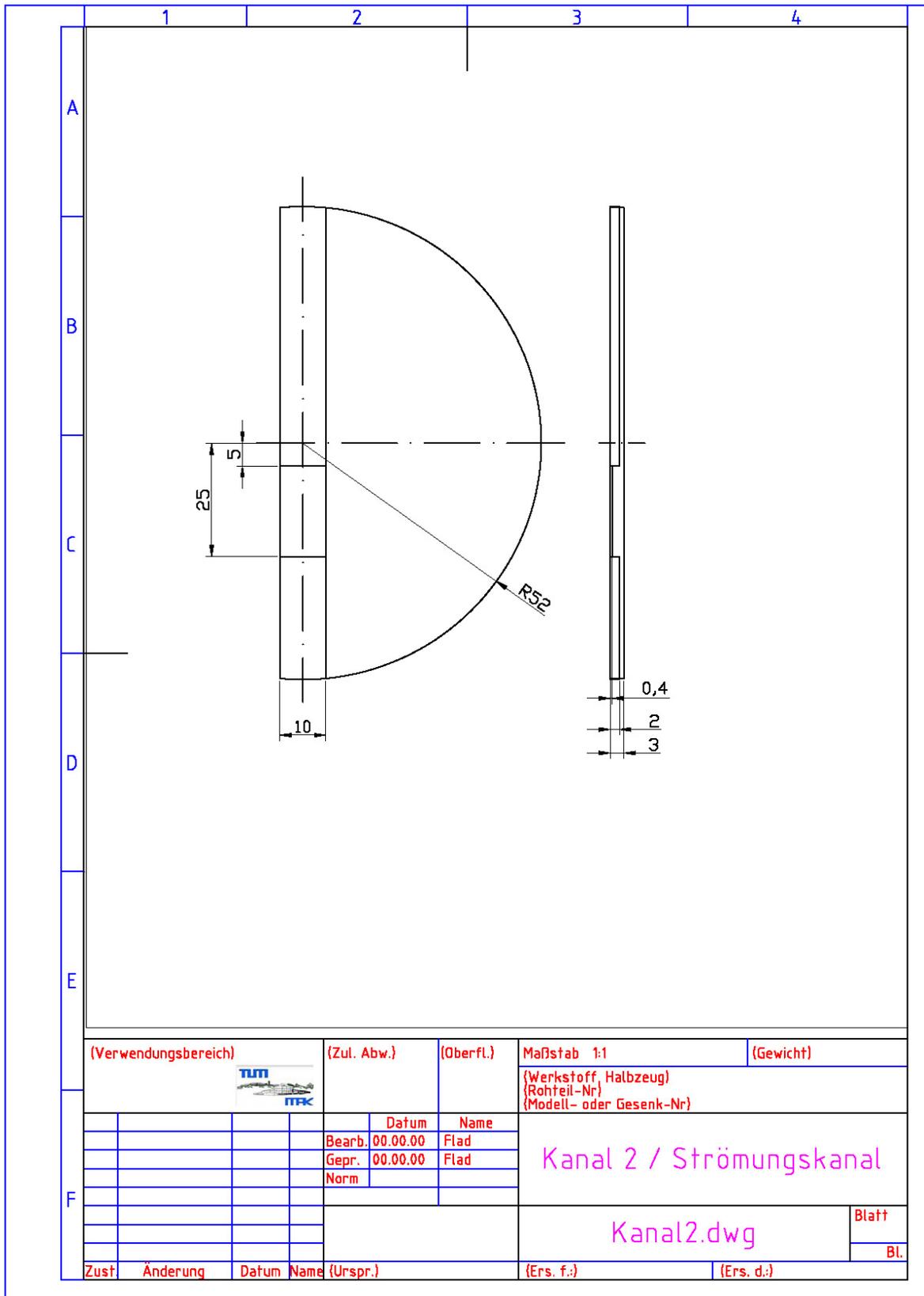
# 9 Anhang

Anhang 1: Konstruktionszeichnungen der Einzelteile der Strömungszelle

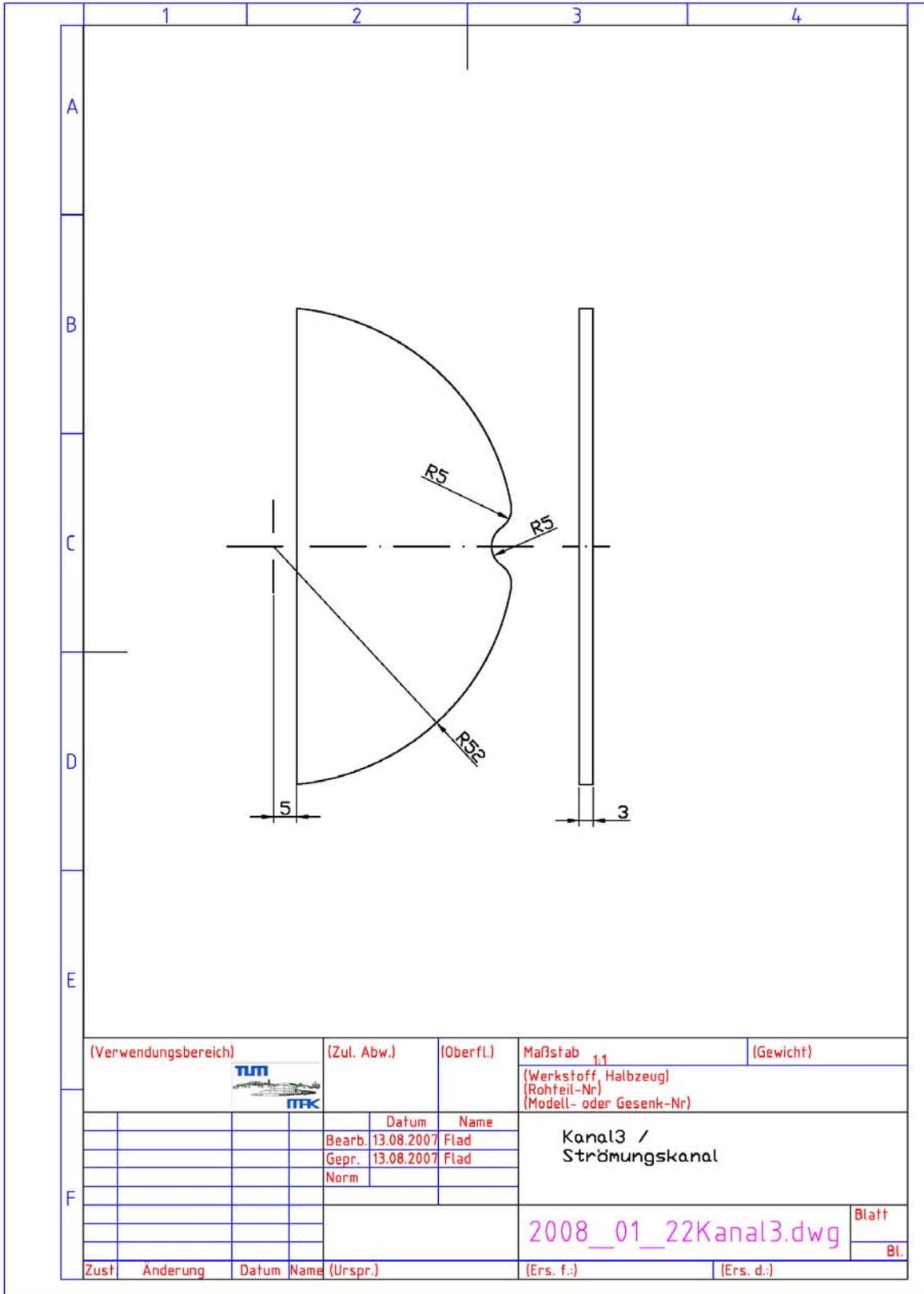


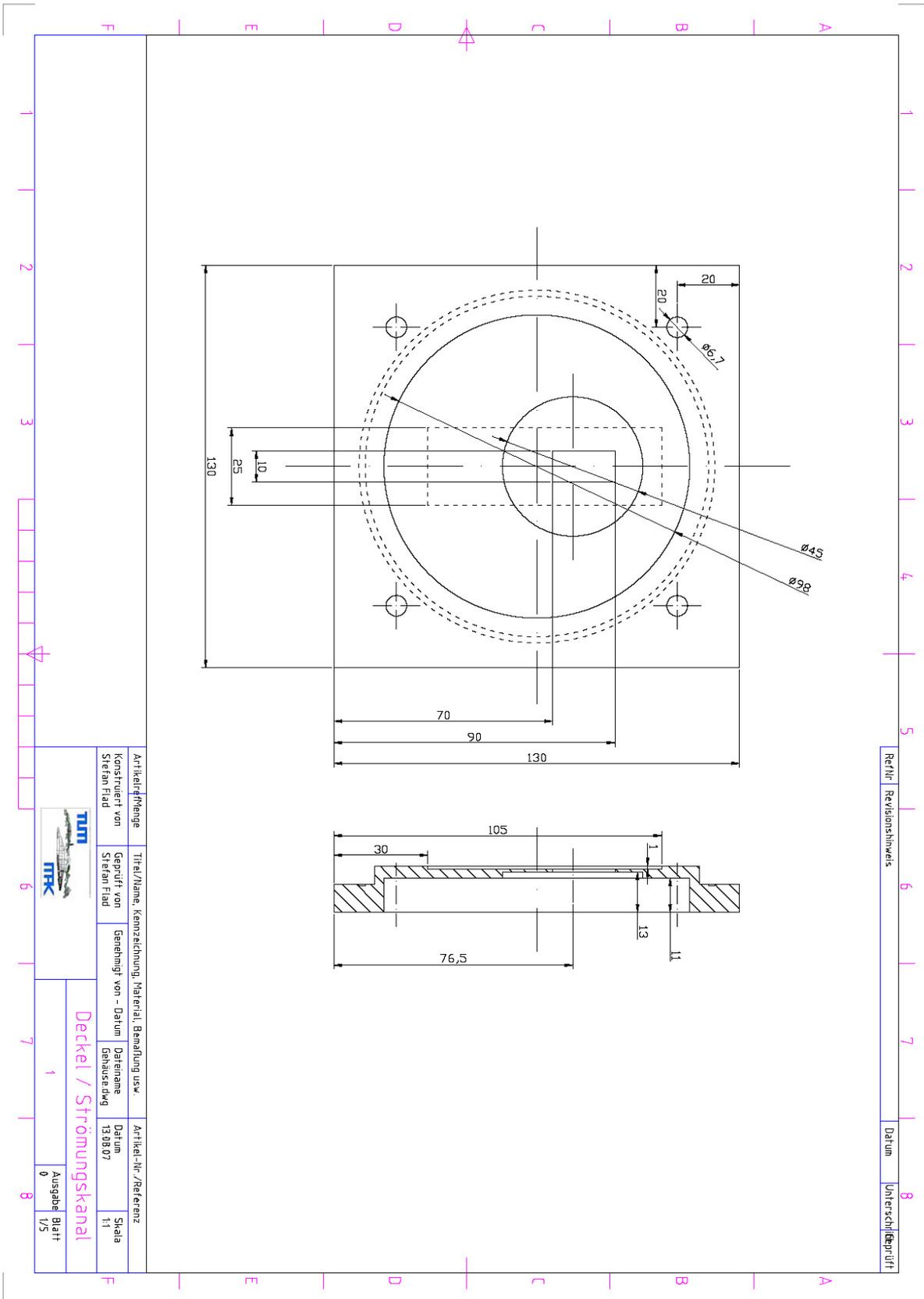


(Verwendungsbereich)		(Zul. Abw.)	(Oberfl.)	Maßstab 1:1	(Gewicht)
				(Werkstoff, Halbzeug) (Rohteil-Nr) (Modell- oder Gesenk-Nr)	
		Datum	Name	Kanal 1 / Strömungskanal	
		Bearb. 00.00.00	Flad		
		Gepr. 00.00.00	Flad		
		Norm			
				Kanal1.dwg	Blatt
					Bl.
Zust	Änderung	Datum	Name (Urspr.)	(Ers. f.)	(Ers. d.)



(Verwendungsbereich)		(Zul. Abw.)		(Oberfl.)		Maßstab 1:1		(Gewicht)	
						(Werkstoff, Halbzeug) (Rohteil-Nr) (Modell- oder Gesenk-Nr)			
		Datum		Name		Kanal 2 / Strömungskanal			
		Bearb. 00.00.00		Flad					
		Gepr. 00.00.00		Flad					
		Norm							
						Kanal2.dwg		Blatt	
								Bl.	
Zust.	Änderung	Datum	Name	(Urspr.)		(Ers. f.)		(Ers. d.)	





Artikelmenge	Titel/Name, Kennzeichnung, Material, Bemalung usw.	Artikel-Nr./Referenz
Konstruiert von Stefan Flad	Gepflegt von Stefan Flad	Datum 13.08.07
Genehmigt von - Datum		Skala 1:1
Gehäusedwg.		Ausgabe 0
TUM MFK		1/5
<b>Deckel / Stromungskanal</b>		

Berlin	Revisionshinweis	Datum	Unterschrift/Geprüft
--------	------------------	-------	----------------------

## 10 Lebenslauf

### PERSÖNLICHE ANGABEN

---

#### Ulrich Bobe

- Geburtsdatum: 06. September 1977
- Geburtsort: Ansbach
- Familienstand: verheiratet mit Kind



### THEORETISCHE AUSBILDUNG

---

09/86 - 07/96 **Humanistisches Albrecht-Ernst-Gymnasium, Oettingen**

Abschluss: Abitur

10/97 - 12/02 **Studium der Technologie und Biotechnologie der Lebensmittel**

Technische Universität München (Weihenstephan)

Abschluss: Dipl.-Ing.

05/02 - 12/02 **Diplomarbeit** am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde

Technische Universität München (Weihenstephan)

Titel: Experimentelle Untersuchungen zur theoretischen Modellierung von Druckverlust und Kräfteverhältnissen innerhalb eines Einzelpfropfens bei der pneumatischen Dichtstromförderung

03/03 – 04/08 **Promotion** am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde,

Technische Universität München (Weihenstephan)

### BERUFLICHER WERDEGANG

---

03/03 – 04/08 **Promotion** am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde, Technische Universität München (Weihenstephan), Untersuchung der Partikelhaftung und der Reinigbarkeit von Schmutzfilmen auf technischen Oberflächen. Projektkoordinator in den Forschungsvorhaben AiF 13586 und AiF ZN 210

seit 05/08 **Project Manager** bei der Nestlé AG in Lausanne, Schweiz

---

**AUS DIESER ARBEIT HERVORGEGANGENE VERÖFFENTLICHUNGEN**

---

Bobe, U., Beck, U., Gamer, N., Reiners, G., Sommer, K.: Reinigung realer Oberflächen, Chemie-Ingenieur Technik, Vol. 77, No.12 (2005)

Bobe, U., Wildbrett, G.: Anforderungen an Werkstoffe und Werkstoffoberflächen bezüglich Reinigbarkeit und Beständigkeit, Chemie Ingenieur Technik Vol. 78, Nr. 11 (2006)

Bobe, U., Sommer, K., Beck, U., Reiners, G., Winzer, B., Peukert, W.: Untersuchungen zur Verbesserung der CIP-Fähigkeit von Oberflächen, Brauwelt Nr. 31/32 (2007)

Bobe, U., Hofmann, J., Sommer, K., Beck, U., Reiners, G.: Adhesion – Where cleaning starts, Trends in Food Science & Technology Vol. 18 (2007)

---

**AUS DIESER ARBEIT HERVORGEGANGENE VORTRÄGE**

---

Bobe, U., Beck, U., Reiners, G., Sommer, K.: Influence on the adhesion of biological particles, Proceedings, „EurAdh 04“, Freiburg (2004)

Bobe, U., Beck, U., Reiners, G., Sommer, K.: Influences on the result of cleaning in food and pharma industry, Proceedings, “Adhesion ‘05“, Oxford, (2005)

Bobe, U., Sommer, K., Beck, U., Reiners, G.: Adhesion as the base of cleaning in food and pharma industry, Proceedings, “WCARP 3“, Peking (2006)

Bobe, U., Sommer, K., Beck, U., Wegwerth, T., Winzer, B., Peukert, W., Schaule, G.: Influence of surface structure on the cleaning of particles, colloids and foulings. Proceedings, “Partec 2007“, Nürnberg (2007)

Bobe, U., Sommer, K., Beck, U., Winzer, B., Peukert, W.: Optimizing the CIP-Cleaning of surfaces, Proceedings, “European Brewing Congress“, Venedig (2007)

Bobe, U., Sommer, K., Beck, U., Wegwerth, T., Winzer, B., Peukert, W.: Influence of surface structure on the cleanability of surfaces, Proceedings, “ECCE 6“, Kopenhagen (2007)