

# **Untersuchung der Lösungsmittelatmosphäre von verdunstenden, gedruckten Fluidfilmen mittels digitaler, holographischer Interferometrie**

**am Fachbereich Maschinenbau  
der Technischen Universität Darmstadt**

zur Erlangung des Grades

Doktor Ingenieur

(Dr.-Ing.)

**Dissertation**

**von Felix Braig**

Erstgutachter: Prof. Dr.-Ing Edgar Dörsam  
Zweitgutachterin: Apl. Prof. Dr. Sc. Tatiana Gambaryan-Roisman

Tag der Einreichung: 23.10.2023  
Tag der mündlichen Prüfung: 20.12.2023

Darmstadt 2023





Braig, Felix: Untersuchung der Lösungsmittelatmosphäre von verdunstenden,  
gedruckten Fluidfilmen mittels digitaler, holographischer Interferometrie  
Darmstadt, Technische Universität Darmstadt,  
Jahr der Veröffentlichung der Dissertation auf TUpriints: 2024  
URN der Dissertation: urn:nbn:de:tuda-tuprints-266326  
Tag der mündlichen Prüfung: 20.12.2023

Veröffentlicht unter CC BY-SA 4.0 International  
<https://creativecommons.org/licenses/>



# Kurzfassung

Um die qualitative und quantitative Verteilung des Lösungsmitteldampfs in der Umgebung von gedruckten Fluidfilmen zu bestimmen, werden eine Inkjet-Einheit und ein Laser-Michelson-Interferometer in die Roboterzelle eines Sechs-Achs-Roboters integriert. Die Inkjet-Druckeinheit und der Roboter werden genutzt, um linienförmige Fluidfilme eines binären Druckfluids aus Ethylenglykol und Ethanol mit unterschiedlichen Längen und Breiten zu drucken und diese automatisiert in den Messarm des Interferometers zu bewegen. Um den Einfluss der natürlichen Konvektion auf die Lösungsmittelkonzentration in der Umgebung der gedruckten Fluidfilme zu untersuchen, wird das Substrat sowohl horizontal als auch vertikal in dem Messarm platziert. Die Interferogramme des Interferometers werden mithilfe einer Kamera aufgenommen und die durch den Lösungsmitteldampf hervorgerufene Phasenverschiebung zwischen dem Messarm und Referenzarm des Interferometers mithilfe der Windowed-Fourier-Transform Methode bestimmt. Nachdem die Phasensprünge durch das Phase Unwrapping entfernt wurden, lässt sich der Gangunterschied berechnen, der durch den Lösungsmitteldampf verursacht wird. Bei dem Gangunterschied handelt es sich um eine in Lichtausbreitungsrichtung integrierte Größe, das heißt die dreidimensionale Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs wird auf die Ebene des Kamerasensors projiziert. Indem die Gangunterschiede mehrerer linienförmiger Fluidfilme unterschiedlicher Länge kombiniert werden, kann eine zweidimensionale Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich des linienförmigen Fluidfilms bestimmt werden. Die maximal ermittelten Stoffmengenkonzentrationen werden dabei an der Phasenkontaktfläche zwischen flüssiger und gasförmiger Phase erreicht. Die Temperatur, der Luftdruck und die Luftfeuchtigkeit werden während der Messungen aufgezeichnet, sodass die bestimmten Konzentrationswerte mit den theoretischen Sättigungsdampfkonzentrationen bei den jeweiligen Bedingungen verglichen werden können. Es zeigt sich für die linienförmigen Fluidfilme, dass der Einfluss der natürlichen Konvektion auf die Lösungsmitteldampfverteilung über den verdunstenden Fluidfilmen mit zunehmender Breite des Fluidfilms steigt. Das Messverfahren eignet sich, um die Randüberhöhung der Verdunstungsrate zu identifizieren und zu quantifizieren. Während die horizontalen Substratpositionen eine symmetrische Randüberhöhung der Verdunstungsrate aufweisen, wird in der vertikalen Substratposition eine starke Asymmetrie deutlich. Um die Reproduzierbarkeit der bestimmten Gangunterschiede zu erhöhen und damit die Genauigkeit der bestimmten Konzentrationsverteilungen weiter zu verbessern, könnte die passive Überwachung der Luftparameter mit einer Überwachung der Substrattemperatur und einer aktiven Steuerung der Umgebungsparameter ergänzt werden.



# Abstract

In order to determine the qualitative and quantitative distribution of solvent vapor in the vicinity of a printed liquid film, the present study combines an inkjet printing unit, a Michelson interferometer with a laser light source and a six-axis robot in a robot cell. The inkjet printing unit and the robot are used to print linear liquid films of different widths and lengths. The printing fluid is a binary mixture of ethylene glycol and ethanol. After printing, the robot places the printed substrates in the measurement arm of the interferometer, both horizontally and vertically. The different substrate orientations are used to determine the influence of natural convection on the distribution of the solvent vapor in the vicinity of the liquid film. The interferograms of the interferometer are acquired using a camera. They are used to compute the vapor induced phase shift between the measurement and reference arm of the interferometer by using the Windowed-Fourier-Transform method. After removing possible phase shifts, the vapor induced change in optical path length can be calculated. It corresponds to an integrated quantity along the direction of light propagation, that is the three-dimensional solvent vapor distribution is projected onto the plane of the camera sensor. By combining the change in optical path length of linear liquid films of different lengths, a two-dimensional solvent vapor distribution along a cross-section going through the middle of the linear liquid film may be deduced. The highest values for the solvent vapor concentration prevail along the gas-liquid interface. The temperature of the ambient air, the air pressure and the relative humidity have been monitored throughout the measurement process in order to compare the experimental concentration values to theoretical predictions of the saturated vapor at the respective ambient conditions. It is shown that for linear liquid films, the influence of natural convection on the distribution of solvent vapor increases with increasing width of the printed film. The measurement method allows for the identification and quantification of an enhanced evaporation rate at the edges of the liquid film. Whereas the evaporation rates are similar for both edges for horizontal substrates, they strongly differ for vertical substrates. To enhance the reproducibility of the determined changes in optical path length of consecutive measurements and hence to improve the accuracy of the determined solvent vapor distribution, it would be beneficial to monitor the substrate temperature and actively control the ambient conditions.



# Danksagung

Ich danke allen, die zu dem Gelingen dieser Dissertation beigetragen haben:

Herrn Prof. Dr.-Ing. Edgar Dörsam - Vielen Dank für die ausgezeichnete Betreuung meiner Arbeit. Ihr konstruktives Feedback hat meinen Arbeitsprozess sehr bereichert und mich immer wieder in meinem Vorhaben bestärkt. In meinen Jahren am Institut sind Sie mir stets mit großem Vertrauen und Wertschätzung begegnet und dafür möchte ich Ihnen von ganzem Herzen danken.

Frau Apl. Prof. Dr. Sc. Tatiana Gambaryan-Roisman - Ihr beständiges Interesse an meinem Messaufbau hat mich immer sehr gefreut. Herzlichen Dank, dass Sie das Zweitgutachten übernehmen.

Dr. Hans Martin Sauer - Ich danke dir für die vielen fachlichen Diskussionen. Deine Begeisterung für die Physik und die gedruckte Elektronik ist ansteckend und hat mich immer wieder sehr motiviert.

Den aktuellen und ehemaligen Mitarbeiter:innen des Instituts - Vielen Dank für die sehr schöne Zeit. Der ständige fachliche Austausch war immer eine große Bereicherung und das freundschaftliche Miteinander macht das IDD zu einem ganz besonderen Ort. Ich hoffe, dass wir weiterhin verbunden bleiben. Mein besonderer Dank gilt dir, Jakob. Danke, dass du dir die Zeit für das Korrekturlesen dieser Arbeit genommen hast.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft und dem Sonderforschungsbereich 1194 mit der Projektnummer 265191195 danke ich für die finanzielle Unterstützung des Messaufbaus.

Zuletzt danke ich meiner Familie für die grenzenlose und außergewöhnliche Unterstützung in allen Lebenslagen. Jetzt habe ich wieder Zeit für euch.





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Zielsetzung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Inkjet-Druckverfahren . . . . .	3
2.1.1	Verfahrensbeschreibung . . . . .	4
2.1.2	Anwendungen . . . . .	5
2.2	Verdunstung von Lösungsmitteln . . . . .	6
2.2.1	Chemisches Potenzial . . . . .	7
2.2.2	Sättigungsdampfdruck . . . . .	8
2.2.3	Verdunstung binärer Flüssigkeitengemische . . . . .	9
2.3	Stofftransport in Gasen . . . . .	11
2.3.1	Konvektiver Stoff- und Wärmetransport in viskosen Fluiden . . . . .	12
2.3.2	Fluiddynamische Grenzschichttheorie . . . . .	14
2.3.3	Numerische Simulationen . . . . .	22
2.4	Fourier-Transformation . . . . .	25
2.5	Stand der Wissenschaft . . . . .	32
<b>3</b>	<b>Messkonzept und experimenteller Aufbau</b>	<b>35</b>
3.1	Messkonzept . . . . .	35
3.1.1	Optische Strahlung in Stoffgemischen . . . . .	35
3.1.2	Abschätzung optischer Effekte über verdunstendem Fluidfilm . . . . .	38
3.1.3	Digitale holografische Interferometrie . . . . .	41
3.2	Experimenteller Aufbau . . . . .	42
3.2.1	Laser-Michelson-Interferometer . . . . .	43
3.2.2	Inkjet-Druckeinheit . . . . .	46
3.2.3	Roboterplattform . . . . .	48
3.3	Charakterisierung des Kamerasensors . . . . .	49
<b>4</b>	<b>Versuchsplan und Auswertungsmethode</b>	<b>57</b>
4.1	Versuchsplan . . . . .	57
4.2	Auswertungsmethode . . . . .	61
4.2.1	Analyse der Referenzaufnahmen . . . . .	62
4.2.2	Analyse der Interferogramme . . . . .	67
4.2.3	Phase Unwrapping . . . . .	76
4.2.4	Berechnung der Konzentrationsverteilung . . . . .	88
4.3	Charakterisierung der Auswertungsmethode . . . . .	90
4.3.1	Einfluss der Abtastrate . . . . .	90
4.3.2	Einfluss des Schwellwerts . . . . .	91
4.3.3	Einfluss des zeitlichen Phase Unwrappings . . . . .	93
4.3.4	Validierung der Kantendetektion . . . . .	95

<b>5</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>97</b>
5.1	Einfluss der Substratneigung . . . . .	97
5.1.1	Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen . . . . .	99
5.1.2	Bestimmung der Stoffmengenkonzentration . . . . .	100
5.1.3	Zeitlicher Verlauf der Stoffmengenkonzentration . . . . .	104
5.1.4	Betrachtung des Diffusionsstroms nahe der Phasengrenzfläche . .	108
5.1.5	Betrachtung von Temperatureffekten . . . . .	111
5.2	Einfluss der Linienbreite . . . . .	114
5.2.1	Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen . . . . .	115
5.2.2	Bestimmung der Stoffmengenkonzentration . . . . .	117
5.2.3	Zeitlicher Verlauf der Stoffmengenkonzentration . . . . .	119
5.2.4	Betrachtung des Diffusionsstroms nahe der Phasengrenzfläche . .	121
5.2.5	Auswertung bei geringen Lösungsmittelkonzentrationen . . . . .	123
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>129</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>133</b>
	<b>Eigene Veröffentlichungen</b>	<b>145</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>147</b>
A.1	Python Libraries . . . . .	147
A.2	Technische Spezifikationen des Computers . . . . .	147
A.3	Weitere Ergebnisse . . . . .	148

# Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

## Abkürzungen

Bezeichnung	Beschreibung
2D-DFT	zweidimensionale, diskrete Fourier-Transformation
CAD	Computer-Aided Design
CCD	Charge-Coupled Device
CMOS	Complementary Metal–Oxide–Semiconductor
DR	Dynamikumfang
EMVA	European Machine Vision Association
EM-Welle	elektromagnetische Welle
EPF	Exponential Phase Field
FT-Methode	Fourier-Transform Methode
GIS	Global Inkjet Systems Ltd.
LED	Light-Emitting Diode
OpenFOAM	Open-Source Field Operation and Manipulation
SNR	Signal-Rausch-Verhältnis
WFT-Methode	Windowed-Fourier-Transform Methode

## Symbole

Symbol	Beschreibung	Einheit
$a$	Hintergrundintensität des Interferogramms	$\text{W m}^{-2}$
$a_{\text{amp}}$	Amplitude der Trägerfrequenz im Ortsraum	-
$a_{\text{const}}$	räumlich konstante Hintergrundintensität des Interferogramms	$\text{W m}^{-2}$
$a_0$	Amplitude der elektromagnetischen Welle nach Durchlaufen des Messarms des Interferometers	$\text{W}^{0,5} \text{m}^{-1}$
$a_1$	Amplitude der elektromagnetischen Welle nach Durchlaufen des Referenzarms des Interferometers	$\text{W}^{0,5} \text{m}^{-1}$
$\hat{a}_{\text{amp}}$	Amplitude der Trägerfrequenz im Frequenzraum	-
$A$	Pixelfläche	$\text{m}^2$
$b$	Intensitätsamplitude der Interferenzstreifen des Interferogramms	$\text{W m}^{-2}$

Symbol	Beschreibung	Einheit
$b_{\text{const}}$	konstante Intensitätsamplitude der Interferenzstreifen des Interferogramms	$\text{W m}^{-2}$
$c$	Stoffmengenkonzentration	$\text{mol m}^{-3}$
$\tilde{c}$	dimensionslose Konzentration	-
$\hat{c}$	reskalierte, dimensionslose Konzentration in der Grenzschichttheorie	-
$c_i$	Stoffmengenkonzentration des Stoffs $i$	$\text{mol m}^{-3}$
$c_1$	Lichtgeschwindigkeit	$\text{m s}^{-1}$
$c_p$	spezifische Wärmekapazität	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
$c_{\text{ph}}$	Exponential Phase Field	-
$\tilde{c}_{\text{ph}}$	Produkt des Exponential Phase Fields und der komplexen Exponentialfunktion der Trägerfrequenz	-
$\tilde{c}_{\text{ph,d}}$	Produkt des diskreten Exponential Phase Fields und der diskreten, komplexen Exponentialfunktion der Trägerfrequenz	-
$C_1, C_2, C_3$	empirische Parameter der Antoine-Gleichung	-
$d_1$	Distanz zwischen dem Brechungsindexgradienten und der Detektorebene (vgl. Abb. 3.1)	m
$d_2$	Distanz auf der Detektorebene um die ein Strahlenbündel aufgrund eines Brechungsindexgradienten verschoben wird (vgl. Abb. 3.1)	-
$D$	Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$D_{\text{H}}$	Gesamtdifferenz zweiter Ordnung eines Pixels gemäß des Herráez-Algorithmus	-
$D_{i,j}$	Diffusionskoeffizient von Stoff $i$ in Stoff $j$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$D_1, D_2$	horizontale und vertikale Differenz zweiter Ordnung eines Pixels gemäß des Herráez-Algorithmus	-
$D_3, D_4$	diagonale Differenzen zweiter Ordnung eines Pixels gemäß des Herráez-Algorithmus	-
$E_e$	radiometrische Bestrahlungsstärke	$\text{W m}^{-2}$
$E_v$	photometrische Beleuchtungsstärke	lx
$E_{v,\text{ND}}$	photometrische Beleuchtungsstärke nach Abschwächung durch Neutral-density Filter	lx
$\mathbf{E}$	elektrische Feldstärke	$\text{V m}^{-1}$
$\mathbf{E}_0$	Amplitude der elektrischen Feldstärke	$\text{V m}^{-1}$
$f_a, f_b$	Frequenzen der als Beispiel dienenden Kosinusfunktionen	$\text{m}^{-1}$
$f_{\text{cx}}$	horizontale Komponente der Trägerfrequenz	$\text{m}^{-1}$
$f_{\text{cy}}$	vertikale Komponente der Trägerfrequenz	$\text{m}^{-1}$
$f_{\text{fok}}$	Brennweite der fokussierenden Linse	m
$f_{\text{h}}$	Hilfsfunktion der Grenzschichttheorie	-
$f_k$	diskrete Abtastwerte im Frequenzraum	$\text{m}^{-1}$
$f_{\text{koll}}$	Brennweite der kollimierenden Linse	m
$f_m$	horizontale Koordinate im diskreten Frequenzraum	-
$f_n$	vertikale Koordinate im diskreten Frequenzraum	-
$f_{\text{Ny}}$	Nyquist-Frequenz	$\text{m}^{-1}$

Symbol	Beschreibung	Einheit
$f_x$	horizontale Koordinate im kontinuierlichen Frequenzraum	$\text{m}^{-1}$
$f_y$	vertikale Koordinate im kontinuierlichen Frequenzraum	$\text{m}^{-1}$
$f_1, f_2, f_3$	Hilfsfunktionen der Grenzschichttheorie	-
$F_{R,1}, F_{R,2}$	Faltungsmasken für die Abschätzung des Gradienten entlang der Diagonalen einer Matrix (Roberts-Operator)	-
$F_E$	Faltungsmaske zur Bestimmung der Endpunkte der Kanten beim Linien-Algorithmus	-
$\mathcal{F}$	kontinuierliche Fouriertransformation der nachstehenden Funktion	-
$\mathcal{F}_d$	diskrete Fouriertransformation der nachstehenden, diskreten Funktion	-
$g$	Betrag der Erdbeschleunigung	$\text{m s}^{-2}$
$g_c$	Faltungsmaske einer Faltungsoperation	-
$g_f$	Fensterfunktion der lokalen Fouriertransformation	-
$g_h$	Hilfsfunktion der Grenzschichttheorie	-
$g_w$	gaußsche Fensterfunktion der Windowed-Fourier-Transform Methode	-
$g_{w,d}$	diskrete gaußsche Fensterfunktion der Windowed-Fourier-Transform Methode	-
$g_x$	x-Komponente des Gravitationsvektors	$\text{m s}^{-2}$
$g_y$	y-Komponente des Gravitationsvektors	$\text{m s}^{-2}$
$g_1, g_2, g_3$	Hilfsfunktionen der Grenzschichttheorie	-
$\mathbf{g}$	vektorielle Erdbeschleunigung	$\text{m s}^{-2}$
$G$	freie Enthalpie	J
$G_R$	Kantenstärke einer Matrix	-
$G_1, G_2$	diagonale Komponenten des Gradienten einer Matrix	-
$Gr$	Grashof-Zahl, dimensionslose Kennzahl	-
$\mathcal{G}$	kontinuierliche Gabor-Transformation	-
$\mathcal{G}_d$	diskrete Gabor-Transformation	-
$\overline{\mathcal{G}}$	gefilterte, kontinuierliche Gabor-Transformation	-
$\overline{\mathcal{G}}_d$	gefilterte, diskrete Gabor-Transformation	-
$h$	allgemeine, kontinuierliche Funktion im Ortsraum	-
$h_d$	allgemeine, diskrete Funktion im Ortsraum	-
$h_p$	Plancksches Wirkungsquantum	J s
$h_t$	allgemeine, kontinuierliche Funktion der Zeit	-
$h_{d,1}, h_{d,2}, h_{d,3}$	diskrete Beispielfunktionen im Ortsraum	-
$h_1, h_2, h_3$	kontinuierliche Beispielfunktionen im Ortsraum	-
$H$	Enthalpie	J
$i$	imaginäre Einheit	-
$I$	Intensität des Interferogramms	$\text{W m}^{-2}$
$I_d$	Intensität des Interferogramms in diskreten Graustufen	-
$I_{\text{freq}}$	Intensität des Interferogramms der „Interferenzreferenz“	$\text{W m}^{-2}$
$I_n$	Intensitätsrauschen des Interferogramms	$\text{W m}^{-2}$
$I_D$	Intensität des rekombinierten Laserstrahls auf dem Detektor	$\text{W m}^{-2}$

Symbol	Beschreibung	Einheit
$I_0$	mittlere in das Interferometer einfallende Intensität	$\text{W m}^{-2}$
$j, k$	Indizes der Abtastwerte einer kontinuierlichen Funktion im Orts- und Frequenzraum	-
$k_h$	Wärmeleitfähigkeit	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
$k_{h,i}$	Wärmeleitfähigkeit des Stoffs $i$	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
$k_c$	Massentransferkoeffizient	$\text{m s}^{-1}$
$\mathbf{k}$	Wellenvektor	$\text{m}^{-1}$
$K$	Systemverstärkung eines Kamerasensors	-
$K_{\text{photo}}$	photometrisches Strahlungsäquivalent	$\text{lm W}^{-1}$
$l$	Länge des Fluidfilms	$\text{m}$
$L$	charakteristische Länge des Systems	$\text{m}$
$\dot{m}$	Verdunstungsrate	$\text{kg s}^{-1} \text{m}^{-2}$
$m, n$	Index des Funktionswerts einer diskreten Funktion, zum Beispiel Index der Pixelreihe beziehungsweise Pixelspalte einer Bildaufnahme	-
$m', n'$	Index der Pixelreihe beziehungsweise Pixelspalte des Pixels, für das die Gabor-Transformation berechnet wird	-
$\bar{m}, \bar{n}$	reelle Konstanten der Grenzschichttheorie	-
$M, N$	Anzahl der Funktionswerte einer diskreten Funktion, zum Beispiel Anzahl der Pixelreihen oder Pixelspalten einer Bildaufnahme	-
$M', N'$	Anzahl der Pixelreihen beziehungsweise Pixelspalten des ausgeschnittenen Fensters bei der Windowed-Fourier-Transform Methode	-
$M_m$	molare Masse	$\text{kg mol}^{-1}$
$M_{m,i}$	molare Masse des Stoffs $i$	$\text{kg mol}^{-1}$
$M_{m,\text{sol}}$	molare Masse des verdunstenden Lösungsmittels	$\text{kg mol}^{-1}$
$n_a$	Abtastrate der Windowed-Fourier-Transform Methode	-
$n_c$	komplexer Brechungsindex	-
$n_{c,i}$	komplexer Brechungsindex des Stoffs $i$	-
$n_{\text{gas}}$	Brechungsindex des Gasgemischs über einem verdunstenden Fluidfilm	-
$n_r$	Realteil des komplexen Brechungsindex	-
$n_\infty$	Brechungsindex der Umgebungsluft unendlich weit von dem verdunstenden Fluidfilm entfernt	-
$N$	Teilchenzahldichte	$\text{mol m}^{-3}$
$N_A$	Avogadro-Konstante	$\text{mol}^{-1}$
$N_{\text{ges}}$	Anzahl der gedruckten Linien	-
$N_i$	Teilchenzahldichte des Stoffs $i$	$\text{mol m}^{-3}$
$\dot{N}_i$	molare Erzeugungsrate des Stoffs $i$	$\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$
$\tilde{N}_i$	Stoffmenge des Stoffs $i$	$\text{mol}$
$p$	Druck	$\text{Pa}$
$p_i$	Partialdruck des Stoffs $i$	$\text{Pa}$
$p_{\text{stat}}$	hydrostatischer Anteil des Drucks	$\text{Pa}$
$p_{\text{sol}}$	Partialdruck des Lösungsmitteldampfes	$\text{Pa}$
$p_\infty$	Umgebungsdruck	$\text{Pa}$

Symbol	Beschreibung	Einheit
$p^+$	Bezugsdruck des chemischen Potentials	Pa
$P$	Molrefraktion	$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$
$P_d$	Sättigungsdampfdruck	Pa
$P_{d,i}$	Sättigungsdampfdruck des Stoffs $i$	Pa
$P_i$	Molrefraktion des Stoffs $i$	$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$
$P_{\text{sol}}$	effektive Molrefraktion des Lösungsmittels	$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$
$P_\infty$	effektive Molrefraktion der reinen Luft	$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$
$q$	Verdampfungsenthalpie	$\text{J mol}^{-1}$
$\dot{q}_v$	volumetrische Rate der thermischen Energieerzeugung	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
$\mathbf{r}$	Ortsvektor	m
$R$	universelle Gaskonstante	$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
$R_H$	Reliabilitätswert eines Pixels beim Herráez-Algorithmus	-
$Re$	Reynolds-Zahl, dimensionslose Kennzahl	-
$s_0$	Beitrag des Anfangs und Endes des Lösungsmittelatmosphäre zu dem Gangunterschied	m
$S$	Entropie	$\text{J K}^{-1}$
$Sc$	Schmidt-Zahl, dimensionslose Kennzahl	-
$t$	Zeit	s
$t_{\text{exp}}$	Belichtungszeit des Kamerasensors	s
$thr$	Schwellwert der Filterung beim Windowed-Fourier-Filtering	-
$T$	Temperatur	K
$u$	Betrag der Geschwindigkeit des Fluids	$\text{m s}^{-1}$
$u_x$	x-Komponente der Geschwindigkeit des Fluids	$\text{m s}^{-1}$
$\tilde{u}_x$	dimensionslose x-Komponente der Geschwindigkeit des Fluids	-
$\hat{u}_x$	reskalierte, dimensionslose x-Komponente der Geschwindigkeit des Fluids in der Grenzschichttheorie	-
$u_y$	y-Komponente der Geschwindigkeit des Fluids	$\text{m s}^{-1}$
$\tilde{u}_y$	dimensionslose y-Komponente der Geschwindigkeit des Fluids	-
$\hat{u}_y$	reskalierte, dimensionslose y-Komponente der Geschwindigkeit des Fluids in der Grenzschichttheorie	-
$\mathbf{u}$	Geschwindigkeit des Fluids	$\text{m s}^{-1}$
$U$	innere Energie	J
$v_g$	Molvolumen des gasförmigen Stoffs $i$	$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$
$v_l$	Molvolumen des flüssigen Stoffs $i$	$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$
$v_{\text{ph}}$	Phasengeschwindigkeit	$\text{m s}^{-1}$
$V$	Volumen	$\text{m}^3$
$V_{\text{Kepl}}$	Vergrößerungsverhältnis des Strahlaufweiters	-
$w$	Breite des Fluidfilms	m
$w_e$	Strahlradius des Lasermoduls gemäß der $1/e^2$ -Definition	m
$w'_e$	Strahlradius des aufgeweiteten Laserstrahls gemäß der $1/e^2$ -Definition	m
$w_{m,i}$	Massenanteil des Stoffs $i$	-

Symbol	Beschreibung	Einheit
$w_0$	Radius der Strahltaile und somit minimaler Radius des fokussierten Laserstrahls	m
$\mathcal{W}$	Windowed-Fourier-Transformation der nachstehenden Funktion	-
$x$	x-Koordinate des kartesischen Koordinatensystems oder unabhängige Variable einer Funktion	m
$x_j$	diskrete Abtastwerte im Ortsraum	m
$\tilde{x}$	dimensionslose x-Koordinate des Koordinatensystems	-
$\hat{x}$	reskalierte, dimensionslose x-Koordinate des Koordinatensystems in der Grenzschnitttheorie	-
$x'$	x-Koordinate einer bestimmten Position im Ortsraum	-
$X$	x-Komponente der Summe der Volumenkräfte, die auf das Kontrollvolumen wirken	$\text{N m}^{-3}$
$y$	y-Koordinate des kartesischen Koordinatensystems	m
$\tilde{y}$	dimensionslose y-Koordinate des Koordinatensystems	-
$\hat{y}$	reskalierte, dimensionslose y-Koordinate des Koordinatensystems in der Grenzschnitttheorie	-
$y'$	y-Koordinate einer bestimmten Position im Ortsraum	-
$Y$	y-Komponente der Summe der Volumenkräfte, die auf das Kontrollvolumen wirken	$\text{N m}^{-3}$
$z$	z-Koordinate des kartesischen Koordinatensystems	m
$\alpha$	Polarisierbarkeit eines Atoms (SI-Einheitensystem)	$\text{C}^2 \text{m}^2 \text{J}^{-1}$
$\alpha'$	Polarisierbarkeit eines Atoms (CGS-Einheitensystem)	$\text{m}^3$
$\beta$	Ablenkungswinkel der optischen Strahlung aufgrund eines Brechungsindexgradienten (vgl. Abb. 3.1)	-
$\beta'$	Substratneigung	-
$\gamma$	mittlerer Grauwert eines Pixels	-
$\gamma_d$	Anzahl der induzierten Elektronen eines abgedunkelten Pixels	-
$\gamma_{\text{dunkel}}$	mittlerer Grauwert eines abgedunkelten Pixels	-
$\gamma_e$	mittlere Anzahl der durch auftreffende Photonen induzierten Elektronen eines Pixels	-
$\gamma_{e,\text{min}}$	absolute Empfindlichkeitsschwelle in Anzahl induzierter Elektronen eines Pixels	-
$\gamma_{e,\text{sat}}$	Sättigungskapazität in Anzahl induzierter Elektronen eines Pixels	-
$\gamma_k$	mittlerer Grauwert eines Pixels der $k$ -ten Bildaufnahme	-
$\gamma_p$	mittlere Anzahl der auftreffenden Photonen auf die Pixelfläche eines Pixels	-
$\gamma_0, \gamma_1$	mittlerer Grauwert der ersten beziehungsweise zweiten Bildaufnahme	-
$\hat{\gamma}_0, \hat{\gamma}_1$	Funktion der einzelnen Pixelwerte der ersten beziehungsweise zweiten Bildaufnahme	-
$\delta$	Dirac-Funktion	-
$\Delta$	Abtastintervall einer Funktion im Ortsraum	m



Symbol	Beschreibung	Einheit
$\Delta n$	Differenz des Brechungsindex des Gasgemischs über einem verdunstenden Fluidfilm und des Brechungsindex der Luft ohne Lösungsmitteldampf	-
$\Delta s$	Gangunterschied (Differenz in der optischen Weglänge)	m
$\Delta\varphi$	Phasenunterschied	-
$\Delta\varphi_c$	durch die Trägerfrequenz verursachte Phasenverschiebung zwischen Mess- und Referenzarm des Interferometers	-
$\Delta\varphi_r$	Phasenverschiebung des Interferogramms der „Interferenzreferenz mit Substrat“	-
$\Delta\varphi_s$	durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung zwischen Mess- und Referenzarm des Interferometers	-
$\Delta\varphi_{s,c}$	korrigierte, durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung zwischen Mess- und Referenzarm des Interferometers	-
$\Delta\varphi'$	Phasenverschiebung zwischen Mess- und Referenzarm des Interferometers inklusive der durch die Trägerfrequenz verursachten Phasenverschiebung	-
$\epsilon_r$	Permittivitätszahl	-
$\epsilon_0$	elektrische Feldkonstante (Permittivität des Vakuums)	A s V <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup>
$\eta$	dynamische Viskosität	Pa s
$\eta_{qe}$	Quanteneffizienz eines Kamerasensors	-
$\eta_{qe,ideal}$	Quanteneffizienz eines idealen Kamerasensors	-
$\kappa$	Extinktionskoeffizient (Imaginärteil des komplexen Brechungsindex)	-
$\lambda$	Wellenlänge	m
$\lambda_L$	Laserwellenlänge	m
$\lambda_{LED}$	dominante Wellenlänge der LED-Beleuchtung	m
$\mu_i$	chemisches Potential des Stoffs $i$	J mol <sup>-1</sup>
$\mu_i^G$	chemisches Potential der gasförmigen Phase des Stoffs $i$	J mol <sup>-1</sup>
$\mu_i^L$	chemisches Potential der flüssigen Phase des Stoffs $i$	J mol <sup>-1</sup>
$\mu_0$	magnetische Feldkonstante (magnetische Permeabilität des Vakuums)	N A <sup>-2</sup>
$\mu_{0,i}$	Bezugspotential des chemischen Potentials des Stoffs $i$	J mol <sup>-1</sup>
$\mu_{0,i}^G$	Bezugspotential des chemischen Potentials der gasförmigen Phase des Stoffs $i$	J mol <sup>-1</sup>
$\mu_{0,i}^L$	Bezugspotential des chemischen Potentials der flüssigen Phase des Stoffs $i$	J mol <sup>-1</sup>
$\nu$	kinematische Viskosität	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
$\xi$	Ähnlichkeitvariable in der Grenzschichttheorie	-
$\pi$	Kreiszahl	-
$\rho$	Dichte	kg m <sup>-3</sup>
$\rho_i$	Dichte des Stoffs $i$	kg m <sup>-3</sup>
$\rho_s$	Dichte der mit Lösungsmitteldampf gesättigten Luft	kg m <sup>-3</sup>
$\rho_{sol}$	Dichte des Lösungsmitteldampfs	kg m <sup>-3</sup>

Symbol	Beschreibung	Einheit
$\rho_\infty$	Dichte der Umgebungsluft unendlich weit von dem verdunstenden Fluidfilm entfernt	$\text{kg m}^{-3}$
$\sigma_d$	Dunkelrauschen eines Kamerasensors in Anzahl der Elektronen	-
$\sigma_{\text{dunkel}}$	Dunkelrauschen eines Kamerasensors in Graustufen	-
$\sigma_e$	Schrotrauschen eines Kamerasensors in Anzahl der Elektronen	-
$\sigma_q$	Quantisierungsrauschen eines Kamerasensors in Graustufen	-
$\sigma_w$	Standardabweichung der gaußschen Fensterfunktion	-
$\sigma_{w,d}$	diskrete Standardabweichung der gaußschen Fensterfunktion	-
$\sigma_\gamma$	zeitliche Varianz des Graustufensignals eines Pixels	-
$\tau$	Hilfsfunktion des Herráez-Algorithmus	-
$\Phi$	viskose Dissipationsfunktion	$\text{s}^{-2}$
$\Phi_e$	radiometrische Strahlungsleistung	W
$\varphi_i$	Volumenanteil des Stoffs $i$	-
$\varphi_{\text{ph}}$	Phasenwert eines Pixels	-
$\chi_i$	Stoffmengenanteil des Stoffs $i$	-
$\hat{\psi}$	Stromfunktion in der Grenzschichttheorie	-
$\omega$	Kreisfrequenz	$\text{s}^{-1}$
$\bar{\omega}$	hydrostatischer Anteil des Drucks	Pa
$\tilde{\omega}$	dimensionsloser, hydrostatischer Anteil des Drucks	-
$\hat{\omega}$	reskaliertes, dimensionsloser, hydrostatischer Anteil des Drucks in der Grenzschichttheorie	-

# 1 Einleitung und Zielsetzung

In zahlreichen Situationen des täglichen Lebens sowie in vielseitigen Forschungsvorhaben spielt die Trocknung beziehungsweise die Verdunstung von Flüssigkeiten eine entscheidende Rolle. Ein genaues Verständnis des Verdunstungsprozesses sowie die Identifikation der Einflussparameter ermöglicht eine genauere Simulation und eine verbesserte Steuerung von technischen Trocknungsprozessen. Im Alltag fällt beispielsweise auf, dass keramische und metallische Oberflächen in der Spülmaschine im Allgemeinen besser trocknen als Oberflächen aus Kunststoff. Dies ist vermutlich auf die unterschiedliche Benetzbarkeit der Oberflächen sowie auf die Wärme- und Temperaturleitfähigkeit der entsprechenden Materialien zurückzuführen (Lopes et al., 2013). Wasser benetzt auf keramischen und metallischen Oberflächen besser als auf Kunststoffoberflächen, sodass sich zusammenhängende, dünne Fluidschichten auf der Oberfläche ausbilden, die in der Spülmaschine homogener und schneller verdunsten.

Es gibt viele weitere Beispiele für die Bedeutsamkeit der Verdunstung von Flüssigkeiten im Alltag, beispielsweise die Verdunstung von Wasser von Pflanzenoberflächen sowie von landwirtschaftlichen Bodenflächen (Burt et al., 2005). Neben der Verdunstung von Wasser werden auch weitere Stoffe, beispielsweise die Verdunstung und Adsorption von flüchtigen organischen Verbindungen von Ackerböden untersucht (Petersen et al., 1994). Neben den Beispielen aus dem Alltag sind Verdunstungsprozesse auch in technischen Anwendungen entscheidend, beispielsweise bei der Trocknung von Elektroden von Lithium-Ionen-Batterien (Zhang et al., 2022), bei der zeit- und energieeffizienten Trocknung von Obst und Gemüse (Onwude et al., 2016) oder bei funktionalen Schichten in der gedruckten Elektronik (Sauer, Braig und Dörsam, 2021). Bei letzterem werden häufig dünne und homogene Schichten benötigt, die elektrische oder optische Funktionen erfüllen. Diese dünnen Schichten werden im Allgemeinen hergestellt, indem ein stark verdünntes Druckfluid auf ein Substrat appliziert und anschließend die Schichtdicke des Fluidfilms durch Verdunstung des Lösungsmittels reduziert wird. Durch den Verdunstungsprozess reduziert sich die Schichtdicke typischerweise von  $0,5\ \mu\text{m}$  bis  $10\ \mu\text{m}$  auf eine Schichtdicke von etwa  $10\ \text{nm}$  bis  $100\ \text{nm}$  der getrockneten Schicht. Aufgrund dessen ist der Verdunstungsprozess beziehungsweise die Trocknung der gedruckten Schicht essenziell für deren Homogenität und damit auch für die Funktionalität des gedruckten Bauteils.

Um das Verständnis des Verdunstungsprozesses zu vertiefen und Verbesserungen des Prozesses zu ermöglichen, wird in der vorliegenden Arbeit der Verdunstungsprozess am Beispiel von gedruckten Fluidfilmen untersucht. Hierbei wird der Fokus, im Gegensatz zu einer Vielzahl bereits bestehender Veröffentlichungen, nicht auf die Dynamik des Fluidfilms, sondern auf die Lösungsmittelatmosphäre gelegt. Die Lösungsmittelatmosphäre bezeichnet die räumliche Verteilung des Lösungsmittels in dem den Fluidfilm umgebenden Gas. Während der Verdunstung eines Fluidfilms entstehen Konzentrationsgradienten des Lösungsmit-

tels in der Lösungsmittelatmosphäre. Der dadurch hervorgerufene Stofftransport in der Gasphase bestimmt die lokale Verdunstungsrate entlang der Fluidfilmoberfläche. Lokale Unterschiede in der Verdunstungsrate führen bei Druckfluiden und anderen mehrkomponentigen Flüssigkeiten zu Konzentrationsgradienten innerhalb des Fluidfilms. Hierdurch entsteht ein Stofftransport innerhalb des Fluidfilms, der potenziell zu einer Ausbildung oder Verstärkung von störenden Inhomogenitäten der getrockneten Schicht führt. Um diese Inhomogenitäten effektiv zu unterdrücken, muss demnach die Konzentrationsverteilung und der Stofftransport in der Lösungsmittelatmosphäre über den Fluidfilmen verstanden werden.

Die wissenschaftliche Zielsetzung der vorliegenden Arbeit besteht zunächst darin, die Lösungsmittelatmosphäre eines bedruckten Substrats und damit den Lösungsmitteldampf in der Umgebung des bedruckten Substrats zu visualisieren. Außerdem soll die qualitative Betrachtung für linienförmige Fluidfilme in eine quantitative Bestimmung der Lösungsmittelkonzentration überführt werden. Für die Konzeption der Messroutine sowie für die Validierung der Ergebnisse werden die Untersuchungen von einer theoretischen Modellbildung des Stofftransports über verdunstenden Fluidfilmen begleitet, wobei die fluiddynamische Grenzschichttheorie auf den Stofftransport über verdunstenden Fluidfilmen angepasst wird.

Die Struktur der Dissertation gliedert sich in insgesamt sechs Kapitel, wobei auf die Einleitung und Zielsetzung die Grundlagen folgen. Dabei wird das Messvorhaben in den wissenschaftlichen Kontext eingeordnet, das heißt die Verdunstung von Lösungsmitteln und der Stofftransport in Gasen werden physikalisch beschrieben und relevante wissenschaftliche Veröffentlichungen werden zusammengefasst. Die Grenzschichttheorie und die numerischen Simulationen des Grundlagenkapitels werden genutzt, um die Größe des Messfensters und das optische Messkonzept abzuleiten, das im folgenden dritten Kapitel vorgestellt wird. Neben der kurzen Beschreibung der optischen Grundlagen werden die zu erwartenden optischen Effekte über verdunstenden Fluidfilmen abgeschätzt, sodass eine fundierte Wahl des Messkonzepts ermöglicht wird. Anschließend werden die einzelnen Komponenten des gewählten experimentellen Aufbaus, das heißt das Laser-Michelson-Interferometer, die digitale Inkjet-Druckeinheit und der Sechs-Achs-Roboter in einer Roboterzelle beschrieben. Das Kapitel schließt mit der Charakterisierung des Kamerasensors, der für die Digitalisierung der Interferogramme des Interferometers genutzt wird. Im vierten Kapitel wird der Versuchsplan vorgestellt und die Auswertungsmethode beschrieben. Die Auswertungsmethode umfasst dabei die Analyse der Referenzaufnahmen sowie die Bestimmung der Phasenverschiebungsverteilung aus den Aufnahmen der jeweiligen Interferogramme. Anschließend werden die Phasensprünge der jeweiligen Phasenverschiebungsverteilung entfernt und durch die Kombination mehrerer Messungen eine quantitative Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs über dem verdunstenden Fluidfilm bestimmt. Das Kapitel schließt mit der Charakterisierung der Auswertungsmethode, wobei der Einfluss der Parameter der Auswertungsmethode auf deren Ergebnis evaluiert wird. Im folgenden fünften Kapitel werden die Ergebnisse der Versuchsreihen präsentiert und diskutiert, bevor im letzten Kapitel die Ergebnisse zusammengefasst werden und ein Ausblick gegeben wird.

## 2 Grundlagen

Zur Vertiefung des Verständnisses des Verdunstungsprozesses gedruckter, dünner Fluidfilme soll in dieser Arbeit die Lösungsmittelatmosphäre von gedruckten Fluidfilmen untersucht werden. Das folgende Kapitel ordnet dabei das Messvorhaben in den wissenschaftlichen Kontext ein. Das erste Unterkapitel beschreibt die Funktionsweise und aktuelle Anwendungen des Inkjet-Druckverfahrens, welches in dieser Arbeit für die Herstellung der Fluidfilme genutzt wird. Daran anschließend wird die Trocknung gedruckter Schichten, insbesondere die Verdunstung von Flüssigkeiten aus binären Flüssigkeitsgemischen betrachtet. In der Luft über dem gedruckten Fluidfilm reichern sich während der Trocknung im Allgemeinen die flüchtigen Lösungsmittel an. Der hierdurch entstehende diffusive und konvektive Stofftransport in der Gasphase über dem Fluidfilm wird im Rahmen der Modellbildung beschrieben. Da die Auswertung des Messverfahrens auf der Fourier-Transformation basiert, wird anschließend ein kurzer, mathematischer Diskurs zur Nutzung der Fourier-Transformation in der Bilddatenverarbeitung gegeben. Das Kapitel schließt mit der Einordnung des vorliegenden Messvorhabens in den Kontext der bestehenden wissenschaftlichen Veröffentlichungen. Insgesamt werden die Erläuterungen auf für diese Arbeit relevante Inhalte beschränkt. Für weitergehende Informationen wird an den jeweiligen Stellen auf die entsprechende Fachliteratur verwiesen.

### 2.1 Inkjet-Druckverfahren

Seit der Entstehung des modernen Buchdrucks mit beweglichen Lettern durch Johannes Gutenberg im 15. Jahrhundert (Steinberg, 1996) wurden in den letzten 600 Jahren eine Vielzahl an unterschiedlichen Druckverfahren und Anwendungen mit teilweise erheblichem Einfluss auf die Gesellschaft entwickelt. Druckverfahren zeichnen sich im Allgemeinen dadurch aus, informative, strukturgebende oder funktionale Strukturen effizient und wiederholbar auf ein Drucksubstrat aufzubringen. Während sich anfängliche Druckverfahren hauptsächlich auf die Vervielfältigung von Informationen konzentrierten, zielen moderne Druckverfahren zum Beispiel auf das Drucken gedruckter, elektronischer Bauteile (Wu, 2017), die flexible Fertigung dreidimensionaler Strukturen (Ngo et al., 2018) oder die ressourcenschonende Herstellung biomedizinischer Anwendungen ab (Gonzalez-Macia et al., 2010).

Die zweidimensionalen Druckverfahren, das heißt jene Druckverfahren, die dünne Schichten aufbringen, werden häufig in die konventionellen Druckverfahren sowie die Digitaldruckverfahren unterteilt. Die konventionellen Druckverfahren lassen sich außerdem in den Durchdruck, den Hochdruck, den Flachdruck sowie den Tiefdruck unterteilen (Kipphan, 2000). Demgegenüber stellen die Elektrofotografie und das Inkjet-Druckverfahren Beispiele

für Digitaldruckverfahren dar. Insbesondere das Inkjet-Druckverfahren wird häufig in neuen Druckanwendungen eingesetzt, da es sich unter anderem durch das flexibel wählbare Druckmuster sowie den ressourcenschonenden Umgang mit dem Druckfluid auszeichnet (Castrejon-Pita et al., 2013). Aufgrund dieser Vorteile wird das Inkjet-Druckverfahren im vorliegenden Messvorhaben genutzt, um zusammenhängende, dünne Fluidfilme herzustellen. Im Folgenden werden zunächst die technischen Details des Inkjet-Druckverfahrens beschrieben und anschließend aktuelle Anwendungsbeispiele dargestellt.

### 2.1.1 Verfahrensbeschreibung

Das Inkjet-Druckverfahren, das unter anderem auch Tintenstrahldruck genannt wird, ist ein Digitaldruckverfahren, bei dem kleine Fluidtröpfchen aus Düsen in einem Druckkopf ausgestoßen und sukzessive auf dem Substrat platziert werden. Da sich der Druckkopf, beziehungsweise die Düsen und das Substrat nicht berühren, handelt es sich um ein berührungsloses Druckverfahren. Je nach Ausstoßverhalten des Druckkopfs werden im Allgemeinen zwei Verfahrensvarianten unterschieden, der *Continuous-Inkjet* sowie der *Drop-on-Demand-Inkjet*. Beim *Continuous-Inkjet* werden Fluidtröpfchen mit einer festen Frequenz ausgestoßen, während beim *Drop-on-Demand-Inkjet* die Fluidtröpfchen nur bei Bedarf ausgestoßen werden. Das Volumen eines einzelnen Fluidtröpfchens befindet sich je nach Anwendung im Bereich zwischen 1 pl und 100 pl. Damit lassen sich üblicherweise Linienbreiten von 30  $\mu\text{m}$  bis 50  $\mu\text{m}$  mit Schichtdicken zwischen 0,1  $\mu\text{m}$  bis 1  $\mu\text{m}$  erreichen (Fukuda und Someya, 2017). Die Druckgeschwindigkeit beträgt je nach Anwendung zwischen

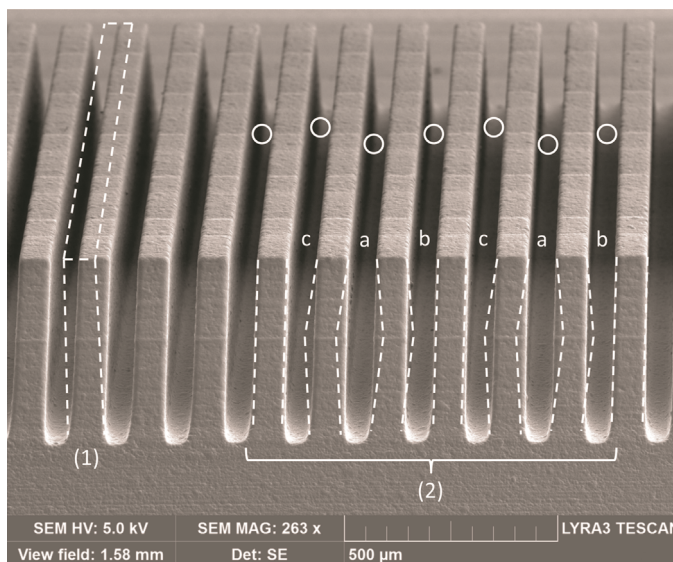


Abbildung 2.1: Die Abbildung zeigt eine Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahme der Düsenkammern eines Xaar 1003 Druckkopfs. Die Kreise markieren die Positionen der Düsenöffnungen an der Seite der jeweiligen Düsenkammer. Die gestrichelten Linien verdeutlichen die Auslenkung der Düsenwände für einen Tropfenausstoß in den Kanälen a. Eine Düsenwand wird von jeweils zwei Düsenkammern geteilt. Sowohl die Größe der Düsenöffnungen als auch die Auslenkung der Düsenwände sind nicht maßstabsgerecht. Mit freundlicher Genehmigung übernommen von Zapka, 2017.

1 m min<sup>-1</sup> und 500 m min<sup>-1</sup> (ebd.). In der vorliegenden Arbeit wurde ein piezoelektrischer *Drop-on-Demand* Druckkopf genutzt. Dieses Verfahren wird im Folgenden näher erläutert.

Beim *Drop-on-Demand*-Inkjet wird das Druckfluid aus einem Reservoir in den Druckkopf und dort in mehrere aneinandergrenzende Düsenkammern gepumpt. Die Abbildung 2.1 zeigt exemplarisch eine Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahme der Düsenkammern eines in dieser Arbeit verwendeten Xaar 1003 Druckkopfs. Die einzelnen Wände der Düsenkammern bestehen aus piezoelektrischem, keramischen Material, sodass die Wände mithilfe einer angelegten elektrischen Spannung verformt werden können. Durch die Verformung der Düsenwände wird eine akustische Welle innerhalb der Düsenkammer angeregt und schließlich ein Fluidtröpfchen aus der Düsenöffnung ausgestoßen. Da in der gezeigten Anordnung eine Düsenwand von jeweils zwei Düsenkammern geteilt wird, können benachbarte Düsenkammern nicht gleichzeitig Fluidtröpfchen ausstoßen. Bei dem Xaar 1003 Druckkopf werden daher drei benachbarte Düsenkammern in drei sich nicht überschneidenden Zyklen angesteuert und die Tröpfchen sequentiell ausgestoßen. (Zapka, 2017)

Aufgrund des Aufbaus und der Funktionsweise eines Inkjet-Druckkopfs ergeben sich mehrere Anforderungen an die physikalischen und chemischen Eigenschaften des Druckfluids. Das Druckfluid hat typischerweise eine Viskosität zwischen 1 mPa s und 25 mPa s und eine Oberflächenspannung zwischen 25 mN m<sup>-1</sup> und 50 mN m<sup>-1</sup> (Merklein et al., 2019). Diese Anforderungen schränken die Vielfalt der verwendbaren Druckfluide ein. Es werden im allgemeinen komplexe Fluide eingesetzt, wobei mithilfe von Additiven und Tensiden eine Verdruckbarkeit des Druckfluids gewährleistet wird (Cinquino et al., 2022). Die Formulierung des Druckfluids stellt eine maßgebliche Herausforderung des Inkjet-Druckverfahrens dar, wobei einerseits ein stabiles Ausstoßen sphärischer Tröpfchen gefördert wird und andererseits unerwünschte Trocknungsphänomene des benetzten Fluidfilms, wie beispielsweise der *Coffee-Ring Effect*, verhindert werden sollen (Amruth et al., 2019). Eine interessante Zusammenfassung der fluiddynamischen Prozesse im Inkjet-Druckverfahren sowie die damit verbundenen Herausforderungen werden in Lohse (2022) präsentiert. Eine umfassende Darstellung der Grundlagen des Druckverfahrens sowie einiger Anwendungen kann Zapka (2017) entnommen werden.

Aufgrund der flexibel wählbaren Druckmuster, dem ressourcenschonenden Umgang mit dem Druckfluid sowie der hohen Reproduzierbarkeit der gedruckten Fluidfilme wird das Inkjet-Druckverfahren in vielseitigen grafischen und funktionalen Anwendungen eingesetzt. Im nächsten Kapitel wird eine Auswahl der aktuellen Anwendungen des Inkjet-Druckverfahrens präsentiert, um die Vielfältigkeit der Anwendungen sowie die damit verbundenen Anforderungen an den Trocknungsprozess der gedruckten Fluidfilme zu verdeutlichen.

## 2.1.2 Anwendungen

Im Allgemeinen lassen sich die Anwendungen des Inkjet-Druckverfahrens in grafische und funktionale Anwendungen unterteilen. Ersteres umfasst jene Anwendungen, in denen das primäre Anwendungsziel darin besteht, das Substrat grafisch aufzuwerten, beziehungsweise die dargestellten Informationen an den Betrachter zu übermitteln. Hierzu zählen beispiels-

weise Plakate, Fotos oder Produktkennzeichnungen im Verpackungsdruck. Insbesondere bei kleinvolumigen Druckauflagen wird das Inkjet-Verfahren den druckformgebundenen, konventionellen Druckverfahren vorgezogen. Den zweiten großen Anwendungsbereich des Inkjet-Druckverfahrens stellen die funktionalen Anwendungen dar, die die funktionelle Eigenschaft der gedruckten Struktur in den Vordergrund stellen. Hierbei werden beispielsweise dreidimensionale Strukturen (Karakurt und Lin, 2020), elektrochemische Sensoren (Moya et al., 2017) oder organische Leuchtdioden (Zhan et al., 2017) gedruckt. Die funktionalen Anwendungen stellen dabei häufig neue Anforderungen an den Druckprozess. Während die grafischen Anwendungen im Allgemeinen diskrete Druckraster nutzen, um Halbtöne zu erzeugen, werden bei den funktionalen Anwendungen meist zusammenhängende Strukturen benötigt, die zum Beispiel Strom leiten können oder Stützstrukturen darstellen. Speziell bei gedruckten Sensoren oder gedruckten lichtemittierenden Bauteilen werden vorwiegend dünne, homogene Schichten benötigt. Eine organische Leuchtdiode besteht beispielsweise aus mehreren organischen Halbleiterschichten zwischen zwei Elektroden, wobei die Effizienz und Stabilität der Leuchtdiode mit einer steigenden Anzahl an Halbleiterschichten verbessert werden kann (Geffroy, Le Roy und Prat, 2006). Werden nun einzelne oder mehrere Schichten des Schichtaufbaus mittels Inkjet appliziert, so gilt es zunächst einen homogenen Fluidfilm auf der vorhergehenden Schicht aufzubringen. Hierzu werden die einzelnen Fluidtröpfchen des Inkjet-Druckkopfs eng nebeneinander gedruckt, sodass die Tropfen auf dem Substrat zusammenfließen und einen zusammenhängenden Fluidfilm bilden. Aufgrund der Oberflächenspannung des Druckfluids nivellieren die Fluidfilme und nach einer homogenen Trocknung des Fluidfilms verbleibt der Feststoff des Druckfluids auf dem Substrat. Im Allgemeinen werden stark verdünnte Druckfluide mit einem Feststoffanteil von 1 wt% bis 2 wt% genutzt, sodass für eine für organische Leuchtdioden typische Schichtdicke von 10 nm bis 100 nm eine Nassfilmdicke zwischen 0,5  $\mu\text{m}$  und 10  $\mu\text{m}$  benötigt wird (Sauer, Braig und Dörsam, 2021). Aufgrund der erheblichen Menge an verdunstendem Lösungsmittel hat der Trocknungsprozess einen erheblichen Einfluss auf die Homogenität der getrockneten Schicht. Im nächsten Kapitel wird daher die Verdunstung von Lösungsmitteln aus einem Fluidfilm sowie die Auswirkungen auf die Schichtbildung betrachtet.

## 2.2 Verdunstung von Lösungsmitteln

Bei funktionalen Druckanwendungen werden häufig dünne, homogene Schichten benötigt, die durch die kontrollierte Verdunstung eines Feststoffs enthaltenden Lösungsmittelfilms hergestellt werden. Um eine konstante Filmdicke zu erreichen und ein Aufreißen des Fluidfilms zu verhindern, gilt es, den Verdunstungsprozess entsprechend zu steuern. Während die Oberflächenspannung des Fluids dazu führt, dass die Grenzfläche zwischen Flüssigkeit und Gas minimiert wird und dadurch der Fluidfilm nivelliert, wirkt der sogenannte Marangoni-Effekt sowie die Wechselwirkung zwischen der Substratoberfläche und der Fluidoberfläche einer homogenen Schichtbildung entgegen. Teile der Effekte werden durch die Verdunstungsrate des Lösungsmittels stark beeinflusst, sodass eine Beschleunigung oder Verlangsamung der Verdunstungsrate einen maßgeblichen Einfluss auf die Schichtbildung ausüben kann. Im Folgenden werden daher die für die vorliegende Arbeit notwendigen Grundlagen der Verdunstung, das heißt des Phasenübergangs von der flüssigen in die gasförmige Phase unterhalb der Siedetemperatur, genannt. Eine tiefere Untersuchung



der Schichtbildung gedruckter, dünner Fluidfilme sowie die dabei zu berücksichtigenden Kräfte können den Veröffentlichungen von Hernandez-Sosa et al. (2013) und Sauer, Braig und Dörsam (2021) entnommen werden.

## 2.2.1 Chemisches Potenzial

Bei dem Übergang des flüssigen Lösungsmittels in die gasförmige Phase handelt es sich um einen Phasenübergang erster Ordnung. Das bedeutet, dass die erste Ableitung der freien Enthalpie nach der Temperatur am Übergangspunkt eine Unstetigkeit aufweist (Nolting, 2013). Die freie Enthalpie  $G$ , auch Gibbs-Energie, Gibbssches Potenzial oder chemisches Potenzial genannt, ist definiert als Differenz der Enthalpie  $H$  und dem Produkt der Temperatur  $T$  und der Entropie  $S$  (Demtröder, 2012)

$$G = H - TS = U + pV - TS. \quad (2.1)$$

Hierbei stellt  $U$  die innere Energie,  $p$  den Druck und  $V$  das Volumen dar. Die freie Enthalpie stellt eine Legendre-Transformation der inneren Energie dar, wobei die Entropie durch die Temperatur und das Volumen durch den Druck ersetzt werden (Stephan et al., 2017). Bei der Legendre-Transformationen werden im Allgemeinen extensive Größen (Entropie, Volumen, Stoffmengen) durch intensive Größen (Temperatur, Druck, chemisches Potenzial) ersetzt. Dies bietet den Vorteil, dass die intensiven Größen experimentell leichter zu ermitteln sind (ebd.). Das chemische Potenzial  $\mu_i$  eines Stoffs  $i$  in einem Stoffgemisch stellt die Ableitung der freien Enthalpie nach der Stoffmenge  $\tilde{N}_i$  des entsprechenden Stoffs dar, wobei die Temperatur, der Druck und die Stoffmengen der anderen Stoffe konstant gehalten werden (ebd.)

$$\mu_i = \left( \frac{\partial G}{\partial \tilde{N}_i} \right)_{T,p,N_{j \neq i}}. \quad (2.2)$$

Bei einem idealen Gas berechnet sich das chemische Potenzial gemäß (ebd.)

$$\mu_i = \mu_{0,i}(p^+, T) + RT \ln \frac{p}{p^+}. \quad (2.3)$$

Hierbei stellt  $\mu_{0,i}(p^+, T)$  das Bezugspotenzial bei einem willkürlich wählbaren Bezugsdruck  $p^+$  und  $R$  die universelle Gaskonstante dar. Das thermodynamische System strebt eine Minimierung des chemischen Potenzials an. Treten in einem System zwei verschiedene Phasen des gleichen Stoffs auf, so befinden sich diese im Gleichgewicht, sofern deren Potenziale gleich groß sind (Fließbach, 2010). Für einen Stoff  $i$  ist das chemische Potenzial der gasförmigen Phase  $\mu_i^G$  und das chemische Potenzial der flüssigen Phase  $\mu_i^L$  demnach im Gleichgewicht, falls

$$\mu_i^G(T, p) = \mu_i^L(T, p). \quad (2.4)$$

Die Menge aller Phasengleichgewichte der flüssigen und gasförmigen Phase beschreiben eine Kurve im  $p$ - $T$ -Diagramm, die sogenannte Dampfdruckkurve im Phasendiagramm. Die Dampfdruckkurve beschreibt bei gegebener Temperatur den Partialdruck des gasförmigen Stoffs, der direkt an der Phasengrenzfläche zwischen flüssiger und gasförmiger Phase erreicht wird. Die Dampfdruckkurve und der Partialdruck des Phasengleichgewichts werden im folgenden Sättigungsdampfdruckkurve und Sättigungsdampfdruck genannt, um sie klarer von dem Partialdruck des Gases abzugrenzen. Der Sättigungsdampfdruck stellt eine

essenzielle Größe der vorliegenden Arbeit dar, da sich daraus mithilfe der allgemeinen Gasgleichung die Stoffmengenkonzentration des entsprechenden gasförmigen Stoffs an der Phasengrenzfläche ermitteln lässt. Aus diesem Grund wird im folgenden Kapitel der Sättigungsdampfdruck näher betrachtet, wobei insbesondere der Temperaturverlauf der Sättigungsdampfdruckkurve sowie der Sättigungsdampfdruck von flüssigen Gemischen erläutert wird.

## 2.2.2 Sättigungsdampfdruck

Wie bereits im vorherigen Abschnitt beschrieben wurde, bezeichnet der Sättigungsdampfdruck den Partialdruck eines gasförmigen Stoffs im Phasengleichgewicht mit der flüssigen Phase des gleichen Stoffs für eine vorgegebene Temperatur. Die folgende Clausius-Clapeyron-Gleichung stellt einen Zusammenhang zwischen der Steigung der Sättigungsdampfdruckkurve im  $p$ - $T$ -Diagramm und der zugehörigen Entropie- und Volumenänderung her (Fließbach, 2010)

$$\frac{dP_d(T)}{dT} = \frac{q}{T(v_g - v_l)}. \quad (2.5)$$

Hierbei stellt  $P_d$  den Sättigungsdampfdruck,  $T$  die Temperatur,  $q$  die Verdampfungsenthalpie,  $v_g$  das Molvolumen des gasförmigen Stoffs und  $v_l$  das Molvolumen des flüssigen Stoffs dar. Die Clausius-Clapeyron Gleichung wird im Folgenden genutzt, um die Siedetemperatur einer Flüssigkeit für unterschiedliche Luftdrücke abzuschätzen. Ein Fluid fängt an zu sieden, sobald der Sättigungsdampfdruck den Luftdruck der umgebenden Atmosphäre übersteigt. Wasser siedet unter Normalbedingungen bei 100 °C. Erhöht beziehungsweise senkt man den Luftdruck nun um 20 hPa, so steigt beziehungsweise sinkt die Siedetemperatur von Wasser gemäß der Clausius-Clapeyron Gleichung um etwa 0,6 °C. Für diese Abschätzung wurde die Verdampfungsenthalpie von Wasser  $q_{\text{was}} = 40 \text{ kJ mol}^{-1}$ , das Molvolumen von Wasser  $v_{l,\text{was}} = 18 \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$  und das Molvolumen von Wasserdampf  $v_{g,\text{was}} = 22 \cdot 10^3 \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$  bei  $T = 373 \text{ K}$  genutzt (ebd.). Hierbei wurde die Steigung der Sättigungsdampfdruckkurve als konstant angenommen. Für eine quantitative Beschreibung des Sättigungsdampfdrucks über einen großen Temperaturbereich ist diese Näherung nicht zulässig. Um diese Einschränkung aufzuheben, wurde in der Fachliteratur eine Großzahl empirischer Formeln vorgeschlagen, wobei die Antoine-Gleichung die nützlichste davon darstellt (Rodgers und Hill, 1978). Diese weit verbreitete Gleichung enthält drei Konstanten  $C_1$ ,  $C_2$  und  $C_3$ , die

Tabelle 2.1: Die Tabelle zeigt die Parameter der Antoine-Gleichung für ausgewählte chemische Stoffe. Die Parameter gelten jeweils im angegebenen Temperaturbereich und wurden von dem National Institute of Standards and Technology mit Messdaten der angegebenen Quellen berechnet (Linstrom und Mallard, 2023).

Chem. Stoff	Temp.-bereich	$C_1$	$C_2$	$C_3$	Quelle
Wasser	256 K bis 373 K	4,65	1435,3	-64,8	Stull (1947)
Ethanol	293 K bis 367 K	5,25	1598,7	-46,4	Ambrose und Sprake (1970)
Ethylenglykol	323 K bis 473 K	4,97	1915,0	-85,0	Jones und Tamplin (1952)
Toluol	309 K bis 385 K	4,08	1343,9	-53,7	Willingham et al. (1945)

aus experimentellen Daten bestimmt werden müssen

$$\log_{10}(P_d) = C_1 - \frac{C_2}{T + C_3}. \quad (2.6)$$

Die Gleichung kann durch eine leichte Modifikation der Clausius-Clapeyron Gleichung erhalten werden und wird deshalb auch als semi-empirisch bezeichnet (ebd.). In Tabelle 2.1 werden die Parameter der Antoine-Gleichung für ausgewählte chemische Stoffe gelistet. Mithilfe der gegebenen Werte lassen sich die Sättigungsdampfdrücke der entsprechenden Stoffe berechnen. Für eine Temperatur von  $60^\circ\text{C}$  (etwa  $333\text{ K}$ ) erhält man für Wasser einen Sättigungsdampfdruck von  $P_{d,\text{was}} = 200\text{ hPa}$ , für Ethanol  $P_{d,\text{ethan}} = 470\text{ hPa}$ , für Ethylenglykol  $P_{d,\text{ethyl}} = 1,8\text{ hPa}$  und für Toluol  $P_{d,\text{tol}} = 190\text{ hPa}$ . Es wurde bereits erwähnt, dass ein Fluid zu sieden beginnt, sobald der Sättigungsdampfdruck des Fluids den Umgebungsdruck erreicht. Gemäß der in Tabelle 2.1 gegebenen Werte erreicht Ethanol bereits bei  $78^\circ\text{C}$  den Normaldruck und hat damit die geringste Siedetemperatur der vorliegenden Stoffe, während Ethylenglykol mit  $197^\circ\text{C}$  die höchste Siedetemperatur aufweist. Im Allgemeinen verdunsten Stoffe mit hohem Sättigungsdampfdruck schneller, als Stoffe mit geringem Sättigungsdampfdruck. Die Verdunstungsrate  $\dot{m}$  kann als Produkt der Dichte des Lösungsmitteldampfs unmittelbar über dem verdunstenden Fluid  $\rho_s$  und einem Massentransferkoeffizienten  $k_c$  abgeschätzt werden, wobei sich Ersteres mit der allgemeinen Gasgleichung direkt aus dem Sättigungsdampfdruck  $P_d$  und der molaren Masse  $M_m$  bestimmen lässt (Mackay und van Wesenbeeck, 2014)

$$\dot{m} = k_c \rho_s = k_c \frac{P_d M_m}{RT}. \quad (2.7)$$

Der Massentransferkoeffizient  $k_c$  mit der Einheit  $\text{m s}^{-1}$  entspricht im Wesentlichen einer Geschwindigkeit, mit der die gesättigte Luft über dem verdunstenden Fluid abtransportiert wird. Sie ist unter anderem abhängig von der Probengeometrie, dem Diffusionskoeffizienten sowie der kinematischen Viskosität des Gases.

### 2.2.3 Verdunstung binärer Flüssigkeitengemische

Die vorherigen Betrachtungen des chemischen Potentials sowie des Sättigungsdampfdrucks beziehen sich ausschließlich auf reine Fluide. Besteht ein Fluid aus mehreren Stoffen, so muss dies in den entsprechenden thermodynamischen Zustandsgleichungen berücksichtigt werden. Im Folgenden wird der Sättigungsdampfdruck sowie das chemische Potential eines binären Flüssigkeitengemischs dargestellt. Die Herleitung erfolgt dabei gemäß der Argumentation in Stephan et al. (2017).

Der Sättigungsdampfdruck eines binären Flüssigkeitengemischs setzt sich aus den Partialdrücken der Stoffe des Fluidgemischs zusammen. Gemäß dem Dalton-Gesetz entspricht der Gesamtdruck des Gasgemischs dabei der Summe der einzelnen Partialdrücke. Um ein Modell für die Abhängigkeit der Partialdrücke von dem Stoffmengenanteil des ersten Stoffes  $\chi_1$  zu bilden, bietet sich zunächst eine Grenzwertbetrachtung an. Angenommen das Flüssigkeitengemisch besteht vollständig aus Stoff 1, so ist der Partialdruck  $p_1$  des Stoffes 1 gleich dem Sättigungsdampfdruck  $P_{d,1}$  der reinen Komponente und der Partialdruck  $p_2$

des Stoffs 2 verschwindet. Besteht das Flüssigkeitsgemisch hingegen vollständig aus Stoff 2, so verschwindet der Partialdruck  $p_1$  und der Partialdruck  $p_2$  entspricht dem Sättigungsdampfdruck  $P_{d,2}$  des reinen Stoffs 2. Diese Grenzbedingungen werden von den linearen Beziehungen (Stephan et al., 2017)

$$p_1 = P_{d,1}\chi_1 \quad (2.8)$$

$$p_2 = P_{d,2}(1 - \chi_1) \quad (2.9)$$

erfüllt, wobei die Temperatur konstant gehalten wird. Die obigen Gleichungen stellen das sogenannte Raoult'sche Gesetz dar. Einige wenige binäre Gemische, welche aus chemisch ähnlichen Stoffen bestehen, erfüllen näherungsweise das Raoult'sche Gesetz und werden ideale Mischungen genannt. Gemäß den Gleichungen (2.8) und (2.9) ist bei idealen Mischungen der Partialdruck eines Stoffs direkt proportional zu dem Stoffmengenanteil des entsprechenden Stoffs in der flüssigen Phase (ebd.).

Die Abbildung 2.2 zeigt den Sättigungsdampfdruck für ein binäres Gemisch aus Ethanol und Ethylenglykol in Abhängigkeit des Stoffmengenanteils von Ethanol. Dieses binäre Gemisch wurde in der vorliegenden Arbeit als Druckfluid eingesetzt. Dargestellt werden einerseits Messwerte bei 50 °C von Gonzalez und van Ness (1983), andererseits der theoretisch erwartete Sättigungsdampfdruck basierend auf der Antoine-Gleichung und dem Raoult'schen Gesetz. Der gemessene Sättigungsdampfdruck stellt die Summe der Partialdrücke des Ethanols und des Ethylenglykols dar, wobei reines Ethanol bei 50 °C einen Sättigungsdampfdruck von 297,4 hPa und reines Ethylenglykol einen Sättigungsdampfdruck von 0,8 hPa besitzt. Letzteres ist vernachlässigbar klein und somit entspricht der gemessene Sättigungsdampfdruck für alle Stoffmengenanteile in etwa dem Partialdruck von Ethanol. Aus der Abbildung wird deutlich, dass das vorliegende Gemisch insbesondere für geringere Stoffmengenanteile von Ethanol von dem theoretisch erwarteten Sättigungsdampfdruck von einer idealen Mischung abweicht. Für einen Ethanol-Stoffmengenanteil von 0,35 liegt der gemessene Sättigungsdampfdruck bei etwa 14,1 kPa und der erwartete Sättigungsdampfdruck von einer idealen Mischung bei etwa 10,5 kPa. Trotz der Abweichungen kann das Raoult'sche Gesetz im Rahmen der vorliegenden Arbeit für Abschätzungen und Vergleiche des Sättigungsdampfdrucks des Ethanol-Ethylenglykol-Gemischs genutzt werden.

Wie bereits in Kapitel 2.2.1 beschrieben wurde, befindet sich eine Flüssigkeit genau dann im Gleichgewicht mit der gasförmigen Phase, falls das chemische Potenzial des Stoffs  $i$  in der flüssigen Phase  $\mu_i^L$  dem chemischen Potenzial des Stoffs  $i$  in der gasförmigen Phase  $\mu_i^G$  entspricht (vgl. Gleichung (2.4)). Es gilt für jeden Stoff  $i$  der Mischung

$$\mu_i^L = \mu_i^G = \mu_{0,i}^G(p^+, T) + RT \ln \frac{p_i}{p^+}, \quad (2.10)$$

wobei  $\mu_{0,i}^G(p^+, T)$  das Bezugspotenzial bei einem willkürlich wählbaren Bezugsdruck  $p^+$  und  $p_i$  den Partialdruck des Stoffs  $i$  darstellt. Letzteres lässt sich mit dem Raoult'schen Gesetz als Produkt des Stoffmengenanteils  $\chi_i$  des Stoffs  $i$  in dem Flüssigkeitengemisch und dem Sättigungsdampfdruck des reinen Stoffs  $P_{d,i}$  ausdrücken. Außerdem wird in einem zweiten Schritt der Sättigungsdampfdruck des reinen Stoffs  $P_{d,i}$  als Bezugsdruck gewählt. Man erhält (Stephan et al., 2017)

$$\mu_i^L = \mu_{0,i}^G(p^+, T) + RT \ln \frac{P_{d,i}\chi_i}{p^+} = \mu_{0,i}^G(P_{d,i}, T) + RT \ln \chi_i. \quad (2.11)$$

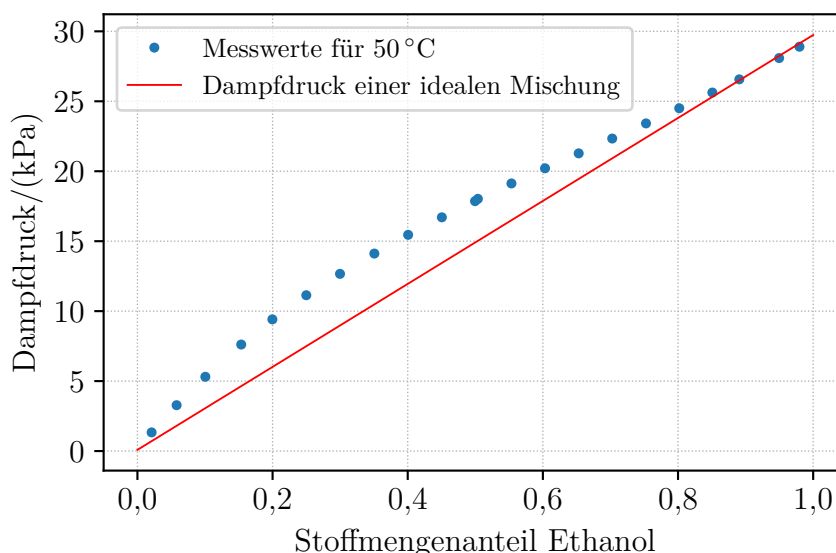


Abbildung 2.2: Das Liniendiagramm zeigt den Sättigungsdampfdruck eines flüssigen Ethanol-Ethylenglykol-Gemischs in Abhängigkeit des Stoffmengenanteils von Ethanol. Es werden Messwerte für 50 °C und die theoretisch erwarteten Dampfdrücke einer idealen Mischung bei gleicher Temperatur gegenübergestellt. Die Messwerte wurden von Gonzalez und van Ness (1983) übernommen und die theoretischen Werte wurden mittels der Antoine-Gleichung und des Raoultischen Gesetzes bestimmt.

Das Bezugspotenzial  $\mu_{0,i}^G(P_{d,i},T)$  entspricht dem chemischen Potenzial des reinen Stoffs im Sättigungszustand. Da für diesen Fall erneut das Gleichgewicht zwischen dem chemischen Potenzial der flüssigen und gasförmigen Phase gilt, erhält man für ideale Mischungen von Flüssigkeiten das folgende chemische Potenzial (ebd.)

$$\mu_i^L = \mu_{0,i}^L(P_{d,i},T) + RT \ln \chi_i. \quad (2.12)$$

Im Allgemeinen wird der Phasenübergang eines dünnen Fluidfilms von der flüssigen in die gasförmige Phase neben der Fluidzusammensetzung und dem entsprechenden chemischen Potenzial und Sättigungsdampfdruck von weiteren Parametern beeinflusst. Unter anderem können die Benetzungseigenschaften und die thermischen Eigenschaften des Substrats einen maßgeblichen Einfluss auf die Verdunstung haben (Lopes et al., 2013; Gambaryan-Roisman, 2015; Benabdelhalim und Brutin, 2022). Eine kurze Zusammenstellung der Grundlagen der Verdunstung dünner Fluidfilme kann Plawsky et al. (2014) entnommen werden. Da insbesondere der diffusive und konvektive Stofftransport im Gas über den dünnen Fluidfilmen für die vorliegende Arbeit relevant ist, wird im folgenden Kapitel das grundlegende Gleichungssystem aufgestellt sowie darauf aufbauend die fluiddynamische Grenzschichttheorie abgeleitet.

## 2.3 Stofftransport in Gasen

In den vorangegangenen Abschnitten wurde erläutert, dass die Verdunstung eines flüssigen Stoffs einen Partialdruck des entsprechenden Stoffs in der Gasphase erzeugt. Handelt es

sich um eine ideale, binäre Mischung, so entspricht der Partialdruck des jeweiligen Stoffs in etwa dem Sättigungsdampfdruck des reinen Stoffs bei gleicher Temperatur, multipliziert mit dem Stoffmengenanteil des Stoffs in der Mischung. Vereinfachend wird angenommen, dass es sich bei der binären Mischung um einen Stoff mit einer niedrigen Siedetemperatur und einen Stoff mit einer hohen Siedetemperatur handelt, sodass bei Raumtemperatur der Sättigungsdampfdruck des Stoffs mit hoher Siedetemperatur vernachlässigbar klein ist. Die Verdunstung und damit auch die Dynamik der Gase in der Umgebung des binären Fluids werden somit von dem Stoff mit der niedrigeren Siedetemperatur bestimmt. Die Anreicherung dieses Stoffs in der Gasphase in der Nähe der Phasenkontaktfläche von flüssiger und gasförmiger Phase führt zu einer inhomogenen Dichteverteilung der Gasatmosphäre. Aufgrund der Erdanziehungskraft kommt es zu natürlicher Konvektion beziehungsweise zu einem konvektiven Stofftransport, der zusätzlich zu dem inhärenten, diffusiven Stofftransport entsteht. Um Aussagen über das Verhältnis von diffusiven zu konvektivem Stofftransport sowie quantitative Aussagen treffen zu können, werden im Folgenden die grundlegenden Gleichungen für den konvektiven Stoff- und Wärmetransport in viskosen Fluiden genannt. Die aufgelisteten Gleichungen lassen sich aus dem zweiten Newtonschen Axiom, der Massenerhaltung, der Teilchenerhaltung und der Energieerhaltung herleiten.

### 2.3.1 Konvektiver Stoff- und Wärmetransport in viskosen Fluiden

Die folgenden Gleichungen beschreiben den konvektiven Stoff- und Wärmetransport in viskosen Fluiden, wobei die Gleichungen auf die zweidimensionale Beschreibung einer viskosen, inkompressiblen und stationären Strömung eines Fluids beschränkt werden. Eine viskose, inkompressible und stationäre Strömung bezeichnet dabei eine Bewegung einer Flüssigkeit oder eines Gases, in der die Reibungseffekte signifikant sind, die Dichte während der Bewegung näherungsweise konstant bleibt und sich die Strömung des Fluids im Laufe der Zeit nicht verändert (Çengel und Cimbala, 2018). Die Strömung eines Gases gilt im Allgemeinen als inkompressibel, falls die Strömungsgeschwindigkeit weniger als 30 % der Schallgeschwindigkeit des jeweiligen Fluids beträgt (ebd.).

Die Auflistung der einzelnen Gleichungen erfolgt weitestgehend analog zu der Zusammenstellung in Bergman et al. (2011). Es werden sequentiell das zweite Newtonsche Gesetz, die Massenerhaltung, die Energieerhaltung und zuletzt die Teilchenerhaltung betrachtet. Die Gleichungen stellen zusammen ein Gleichungssystem dar, das den Stoff- und Wärmetransport in der Lösungsmittelatmosphäre eines verdunstenden Fluidfilms vollständig beschreiben kann.

#### Inkompressible Navier-Stokes-Gleichung

Das zweite Newtonsche Gesetz der klassischen Mechanik beschreibt die Impulsänderung eines Teilchens, falls dieses Teilchen mit einem anderen Körper beziehungsweise einem Kraftfeld wechselwirkt (Demtröder, 2012). Angewandt auf ein differentielles Kontrollvolumen eines Fluids bedeutet dies, dass die Summe aller Kräfte auf das Kontrollvolumen

gleich dem Gesamtimpulsstrom ist, der in das Kontrollvolumen eingebracht wird oder dieses verlässt (Bergman et al., 2011)

$$\rho \left( u_x \frac{\partial u_x}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) = -\frac{\partial p}{\partial x} + \eta \left( \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2} \right) + X \quad (2.13)$$

$$\rho \left( u_x \frac{\partial u_y}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_y}{\partial y} \right) = -\frac{\partial p}{\partial y} + \eta \left( \frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} \right) + Y. \quad (2.14)$$

Die beiden Gleichungen stellen die Kräftegleichgewichte für die  $x$ - und  $y$ -Komponente des kartesischen Koordinatensystems dar, wobei auf der linken Seite die Veränderung des Impulses und auf der rechten Seite die Flächen- und Volumenkräfte auf das jeweilige Kontrollvolumen stehen. Die Variablen  $u_x$  und  $u_y$  entsprechen der  $x$ - beziehungsweise  $y$ -Komponente der Strömungsgeschwindigkeit des Fluids,  $\rho$  entspricht der Dichte,  $p$  dem Druck und  $\eta$  der dynamischen Fluidviskosität. Die Variablen  $X$  und  $Y$  entsprechen den Volumenkräften, die auf das Kontrollvolumen wirken und fassen zentrifugale, magnetische, elektrische und Gravitationskräfte zusammen (ebd.). Bei der Verdunstung von Lösungsmitteln liegt ausschließlich die Erdanziehungskraft vor, sodass sich die Volumenkräfte auf das Produkt der Dichte mit der jeweiligen Komponente der Erdbeschleunigung  $\mathbf{g}$  vereinfachen, also  $X = \rho g_x$  beziehungsweise  $Y = \rho g_y$ . Die Gleichungen (2.13) und (2.14) entsprechen den inkompressiblen Navier-Stokes-Gleichungen für eine stationäre Strömung, also  $\partial u_x / \partial t = \partial u_y / \partial t = 0$  (Bejan, 2013).

### Massenerhaltung

Bei inkompressiblen Strömungen ist die Dichte weder eine Funktion des Orts noch der Zeit. Die Massenerhaltung, die in diesem Fall auch als inkompressible Kontinuitätsgleichung bezeichnet wird, gibt an, dass die Divergenz des Strömungsfeldes  $\vec{u}$  beziehungsweise die Summe der partiellen Ableitungen der Komponenten der Strömungsgeschwindigkeit nach dem Ort null ergeben (Çengel und Cimbala, 2018)

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} = 0. \quad (2.15)$$

In Worten ausgedrückt bedeutet dies, dass der in ein Kontrollvolumen fließende Massenstrom dem Massenstrom entsprechen muss, der dem Kontrollvolumen entweicht.

### Energieerhaltung

Für eine stationäre, inkompressible, zweidimensionale Strömung eines Fluids mit konstanten Fluideigenschaften in  $x$ - und  $y$ -Richtung gilt (Bergman et al., 2011)

$$\rho c_p \left( u_x \frac{\partial T}{\partial x} + u_y \frac{\partial T}{\partial y} \right) = k \left( \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right) + \eta \Phi + \dot{q}_v. \quad (2.16)$$

Hierbei bezeichnet  $c_p$  die spezifische Wärmekapazität des Fluids bei konstanter Temperatur,  $k_h$  die Wärmeleitfähigkeit,  $\dot{q}_v$  die volumetrische Rate der thermischen Energieerzeugung,

$\eta$  die dynamische Viskosität und  $\Phi$  die viskose Dissipationsfunktion. Der Term auf der linken Seite der Gleichung beschreibt den Transport thermischer Energie aufgrund der Bewegung des Fluids. Der erste Term der rechten Seite beschreibt den diffusiven Transport thermischer Energie und der zweite Term, die sogenannte viskose Dissipation, beschreibt die irreversible Energieumwandlung von kinetischer Energie in Wärmeenergie, die aufgrund der internen Reibung im Fluid hervorgerufen wird. Die übrigen Quellen thermischer Energie werden im dritten Term  $\dot{q}_v$  zusammengefasst, zum Beispiel die Umwandlung chemischer, atomarer oder elektrischer Energie (Bergman et al., 2011).

## Teilchenerhaltung

Neben der Massen- und Energieerhaltung gilt in einem Fluid auch die Teilchenerhaltung. Bei der Betrachtung eines Kontrollvolumens bleibt daher die Anzahl der Atome oder Moleküle eines Stoffs konstant. Dies gilt bei einem binären oder mehr-komponentigen Stoffgemisch für jeden Stoff separat. Für einen Stoff  $A$  in einem umgebenden Stoff  $B$  bedeutet dies, dass die Summe der in ein Kontrollvolumen effektiv eingebrachten Teilchenrate und der Rate der Teilchenerzeugung innerhalb des Kontrollvolumens null ergeben muss (ebd.)

$$u_x \frac{\partial c_i}{\partial x} + u_y \frac{\partial c_i}{\partial y} = D_{i,j} \left( \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c_i}{\partial y^2} \right) + \dot{N}_i. \quad (2.17)$$

Die Variable  $c_i$  ist die Stoffmengenkonzentration des Stoffs  $i$ ,  $D_{i,j}$  bezeichnet den Diffusionskoeffizienten von Stoff  $i$  in Stoff  $j$  und  $\dot{N}_i$  bezeichnet die molare Erzeugungsrate des Stoffs  $i$  im Kontrollvolumen. Während die linke Seite der Gleichung den Transport der Teilchen aufgrund der Bewegung des Fluids beschreibt, beschreibt der erste Term der rechten Seite den diffusiven Transport der Teilchen. Die Gleichung (2.17) ist daher auch als Diffusions-Konvektionsgleichung bekannt (Dollet und Boulogne, 2017).

Vergleicht man die Gleichungen (2.16) und (2.17), so fällt auf, dass sich die Gleichungen für die Energieerhaltung und die Teilchenerhaltung mathematisch stark ähneln. Es handelt sich in beiden Fällen um skalare Transportgleichungen, wobei die Stoffmengenkonzentration  $c_i$  die Position der Temperatur einnimmt und der Diffusionskoeffizient  $D_{i,j}$  die thermische Leitfähigkeit ersetzt (Bejan, 2013). Diese Analogie führt dazu, dass die mathematische Beschreibung der Wärmeübertragung in Fluiden weitestgehend auf den Stofftransport in Fluiden übertragen werden kann. Ein verdunstender Fluidfilm entspricht, je nach Dichte des verdunstenden Stoffs, in dieser Analogie einer beheizten oder gekühlten Platte. Im folgenden Kapitel werden die hier präsentierten Gleichungen zu einem Gleichungssystem zusammengestellt, das die natürliche Konvektion und den resultierenden Stofftransport in der Lösungsmittelatmosphäre eines horizontalen, verdunstenden Fluidfilms beschreibt. Um die Lösung des Gleichungssystems zu ermöglichen, werden thermische Effekte vernachlässigt. Es erfolgt eine isotherme Betrachtung.

### 2.3.2 Fluiddynamische Grenzschichttheorie

Um das Fließverhalten von Fluiden vergleichen und klassifizieren zu können, werden in der Strömungsmechanik häufig dimensionslose Kennzahlen eingeführt. Die dimensionslosen



Kennzahlen bilden beispielsweise ein Verhältnis von entgegenwirkenden Kräften ab und erlauben damit eine Einordnung des Fließverhaltens entsprechend dem numerischen Wert der dimensionslosen Kennzahl. Zudem vereinfachen sie die maßgeblichen Gleichungen eines Systems, indem sie diese dimensionslos machen und die Anzahl der nötigen Variablen reduzieren (Ruzicka, 2008). Eine allgemeine Übersicht der dimensionslosen Kennzahlen, unter anderem für den Stofftransport, gibt Ruzicka (ebd.). Eine spezielle Übersicht der dimensionslosen Kennzahlen in der Strömungsmechanik und deren Interpretation kann Tabelle 6.2 in Bergman et al. (2011) entnommen werden. Die sogenannte Reynolds-Zahl  $Re$  stellt eine häufig verwendete dimensionslose Kennzahl in der Strömungsmechanik dar. Sie gibt das Verhältnis von Trägheits- zu Reibungskräften an und ist gegeben durch (Mersmann, 1986)

$$Re = \frac{\rho u L}{\eta}, \quad (2.18)$$

wobei  $\rho$  die Dichte,  $u$  die Strömungsgeschwindigkeit,  $L$  eine charakteristische Länge des Systems und  $\eta$  die dynamische Viskosität des Fluids darstellt. Im Allgemeinen besitzen Gase eine äußerst geringe dynamische Viskosität, sodass insbesondere für schnelle Strömungen im offenen Raum die Trägheitskräfte dominieren und der Einfluss der Viskosität auf die Strömungseigenschaften des Gases vernachlässigt werden kann. Die Grenzlösung  $Re = \infty$  stellt für viele technische Anwendungen mit sehr hohen Reynolds-Zahlen eine gute Näherung dar (Schlichting, Gersten und Krause, 2006). Ein bedeutender Nachteil dieser Näherung ist jedoch, dass sie die Haftbedingung nicht erfüllt, das heißt sie kann das Verhalten von Fluiden in der Nähe einer festen Oberfläche nicht korrekt beschreiben (ebd.). Gemäß der Haftbedingung der Strömungsmechanik muss die Strömungsgeschwindigkeit eines Fluids an einer festen Oberfläche stets gleich null sein (Ruzicka, 2008). Die im Jahr 1904 erstmals von Prandtl vorgestellte fluiddynamische Grenzschichttheorie löst das Problem, indem eine dünne Grenzschicht in der Nähe der festen Oberfläche eingeführt wird (Prandtl und Betz, 2010). Innerhalb dieser Grenzschicht ist die Viskosität des Fluids endlich und außerhalb der Grenzschicht vernachlässigbar klein (Schlichting, Gersten und Krause, 2006). Die konzeptionelle Aufteilung des Strömungsfeldes in diese zwei Bereiche vereinfacht die fluiddynamischen Gleichungen erheblich und ermöglicht die theoretische Behandlung der entsprechenden Strömungen (ebd.).

Verdunstet ein Lösungsmittel aus einem Fluidfilm, so entspricht der Partialdruck des verdunstenden Lösungsmittels an der gesamten Phasengrenzfläche zwischen flüssiger und gasförmiger Phase dem Sättigungsdampfdruck der Fluidtemperatur an der entsprechenden Stelle (vgl. Kapitel 2.2). Ist die Dichte der mit Lösungsmittel angereicherten Luft geringer als die Dichte der umgebenden Luft und zeigt die Gravitationskraft senkrecht nach unten, so steigt die mit Lösungsmittel angereicherte Luft nach oben. Zentral über dem Fluidfilm entsteht ein Unterdruck und reine Luft strömt von den Seiten des Fluidfilms nach. Beschränkt man die Betrachtung auf eine Kante des Fluidfilms, so lässt sich die darüber entstehende Strömung mithilfe der fluiddynamischen Grenzschichttheorie beschreiben. Hierfür werden drei Näherungen getroffen:

1. Die gesamte Phasengrenzfläche zwischen flüssiger und gasförmiger Phase hat die gleiche Temperatur und entspricht der umgebenden Lufttemperatur.
2. Die endliche Dicke des Fluidfilms wird vernachlässigt, das heißt die Struktur der Benetzungsrandlinie des Fluidfilms wird nicht berücksichtigt und es gibt keinen

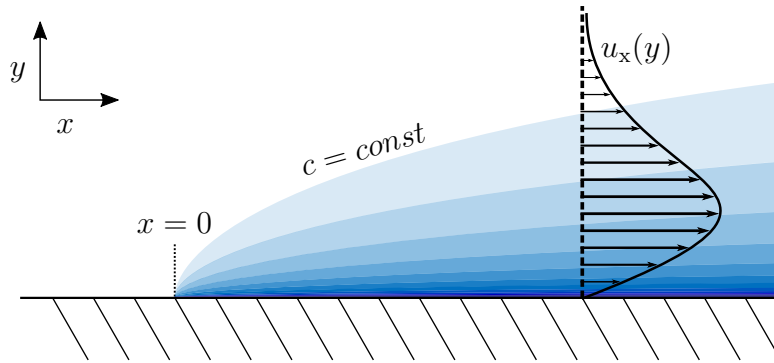


Abbildung 2.3: Die Abbildung skizziert die zweidimensionale Grenzschichtströmung über einer horizontalen, halbunendlichen Platte. Die Ursache für die Grenzschichtströmung ist ein verdunstender Fluidfilm, der an der Stelle  $x = 0$  beginnt und sich unendlich in positive  $x$ -Richtung ausdehnt. Die Blautöne kennzeichnen die abnehmende Lösungsmittelkonzentration innerhalb der Grenzschicht und der eingezeichnete Graph beschreibt die horizontale Strömungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit der  $y$ -Komponente.

Höhenunterschied zwischen Substrat und Fluidfilm.

3. Die Strömung über eine Kante des Fluidfilms wird nicht von den anderen Kanten des Fluidfilms beeinflusst.

Mithilfe der genannten Näherungen lässt sich das Strömungsverhalten über der Kante eines Fluidfilms mit einer horizontalen, halbunendlichen Platte modellieren. Die Abbildung 2.3 zeigt eine entsprechende Skizze des Modells sowie der erwarteten Strömung. Der Fluidfilm beginnt an der Stelle  $x = 0$  und dehnt sich unendlich in positive  $x$ -Richtung aus. Oberhalb des Fluidfilms entsteht die in Blautönen gekennzeichnete Grenzschicht, wobei die Linien zwischen den Blautönen jeweils Linien konstanter Lösungsmittelkonzentration darstellen. Die Lösungsmittelkonzentration nimmt mit zunehmender Entfernung vom Fluidfilm ab. Neben der schematischen Darstellung der Lösungsmittelverteilung skizziert Abbildung 2.3 auch den Verlauf der horizontalen Strömungsgeschwindigkeit  $u_x$  in Abhängigkeit der  $y$ -Komponente. Aufgrund der Haftbedingung ist die Strömungsgeschwindigkeit an der Fluidfilmoberfläche null. Die horizontale Strömungsgeschwindigkeit erreicht innerhalb der Grenzschicht ein Maximum und fällt dann im Unendlichen wieder auf null ab.

Die in Abbildung 2.3 skizzierte Grenzschichtströmung wurde in der Fachliteratur in unterschiedlichen Varianten diskutiert. Insbesondere befassen sich zahlreiche Veröffentlichungen mit der durch natürliche Konvektion hervorgerufenen Grenzschichtströmung über beheizten und gekühlten Platten. Aufgrund der Analogie der Wärmeübertragung und des Stofftransports (vgl. Kapitel 2.3.1) lassen sich diese Beschreibungen jedoch weitestgehend auf die Verdunstung eines Fluidfilms übertragen. Basierend auf den grundlegenden Gleichungen des Stofftransports in viskosen Fluiden, wird im Folgenden die Grenzschichtströmung über einer Kante eines verdunstenden Fluidfilms bestimmt, die durch die natürliche Konvektion hervorgerufen wird. Die Lösung des Gleichungssystems erfolgt dabei teilweise analog zu Dholey (2016) und Dollet und Boulogne (2017), wobei die Gleichungen von dem Wärmetransport auf den Stofftransport beziehungsweise von Zylinderkoordinaten in kartesische Koordinaten übertragen werden.

Gesucht wird ein Vektorfeld  $\mathbf{u}(x,y) = (u_x(x,y), u_y(x,y))$  und ein Skalarfeld  $c(x,y)$ , das die Massenerhaltung (vgl. Gleichung (2.15)), die inkompressiblen Navier-Stokes-Gleichungen (vgl. Gleichungen (2.13) und (2.14)) und die Teilchenerhaltung (vgl. Gleichung (2.17)) erfüllt. Aufgrund der isothermen Betrachtung muss die Energieerhaltungsgleichung (2.16) nicht berücksichtigt werden. Man erhält für einen horizontalen, verdunstenden, halbunendlichen Fluidfilm das folgende Gleichungssystem

$$\frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} = 0 \quad (2.19)$$

$$\rho_\infty \left( u_x \frac{\partial u_x}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) = -\frac{\partial p}{\partial x} + \eta \left( \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2} \right) \quad (2.20)$$

$$\rho_\infty \left( u_x \frac{\partial u_y}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_y}{\partial y} \right) = -\frac{\partial p}{\partial y} - \rho(c)g + \eta \left( \frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} \right) \quad (2.21)$$

$$u_x \frac{\partial c}{\partial x} + u_y \frac{\partial c}{\partial y} = D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right). \quad (2.22)$$

Für die beiden inkompressiblen Navier-Stokes-Gleichungen (2.20) und (2.21) wurde dabei im Vergleich zu den grundlegenden Gleichungen in Kapitel 2.3 die sogenannte Boussinesq-Näherung eingeführt. Diese geht von einer insgesamt kleinen Dichteänderung des Gases aus, sodass die Dichte fast überall als konstant angenommen werden kann, außer in der Gewichtskraft, die die natürliche Konvektion antreibt (ebd.). In den Gleichungen entspricht diese Gewichtskraft dem zweiten Term der rechten Seite von Gleichung (2.21), wobei die Dichte  $\rho$  linear von der Lösungsmittelkonzentration  $c$  abhängt (ebd.)

$$\rho(c) = \rho_0 - \Delta\rho \frac{c}{c_s} = \rho_0 - (\rho_0 - \rho_s) \frac{c}{c_s}. \quad (2.23)$$

Hierbei und nachfolgend bezeichnen die Indizes 0,  $S$  oder  $\infty$  die jeweilige Größe bei reiner Luft, bei gesättigter Luft oder im Unendlichen. Neben der Boussinesq-Näherung wurde in Gleichung (2.22) die molare Erzeugungsrate des Stoffs  $\dot{N}_i$  null gesetzt, da keine Stofferzeugung vorliegt. Das gezeigte Gleichungssystem besteht aus drei linearen partiellen Differenzialgleichungen zweiter Ordnung und einer linearen partiellen Differenzialgleichung erster Ordnung. Das Ziel der folgenden Umformungen besteht darin, die Gleichungen zu entdimensionalisieren und in ein gekoppeltes Differenzialgleichungssystem von sechs gewöhnlichen Differenzialgleichungen erster Ordnung umzuwandeln. Dieses kann anschließend mittels eines numerischen Lösungsverfahrens gelöst werden.

Für die inkompressiblen Navier-Stokes-Gleichungen wird der Gesamtdruck  $p$  in einen hydrostatischen Anteil  $p_{\text{stat}}$  und einen hydrodynamischen Anteil  $\bar{\omega}$  aufgeteilt. Es gilt  $p = p_{\text{stat}} + \bar{\omega}$ ,  $\partial p_{\text{stat}}/\partial y = -\rho_\infty g$  und  $\partial p_{\text{stat}}/\partial x = 0$  (ebd.). Das Einsetzen in die Gleichungen (2.20) und (2.21) ergibt

$$\rho_\infty \left( u_x \frac{\partial u_x}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) = -\frac{\partial \bar{\omega}}{\partial x} + \eta \left( \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2} \right) \quad (2.24)$$

$$\rho_\infty \left( u_x \frac{\partial u_y}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_y}{\partial y} \right) = -[\rho(c) - \rho_\infty]g - \frac{\partial \bar{\omega}}{\partial y} + \eta \left( \frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} \right). \quad (2.25)$$

Die Gleichungen (2.15), (2.22), (2.24) und (2.25) werden entdimensionalisiert, indem dimensionslose Variablen für den Ort  $\tilde{x} = x/L$ ,  $\tilde{y} = y/L$ , die Strömungsgeschwindigkeit

$\tilde{u}_x = u_x L/\nu$ ,  $\tilde{u}_y = u_y L/\nu$ , den hydrodynamischen Druck  $\tilde{\omega} = \bar{\omega} L^2/(\rho_\infty \nu^2)$  und die Konzentration  $\tilde{c} = (c - c_\infty)/(c_s - c_\infty)$  eingeführt werden. Hierbei bezeichnet  $L$  eine charakteristische Länge des Systems und  $\nu = \eta/\rho$  die kinematische Viskosität des Fluids. Man erhält für das Gleichungssystem

$$\frac{\partial \tilde{u}_x}{\partial \tilde{x}} + \frac{\partial \tilde{u}_y}{\partial \tilde{y}} = 0 \quad (2.26)$$

$$\tilde{u}_x \frac{\partial \tilde{u}_x}{\partial \tilde{x}} + \tilde{u}_y \frac{\partial \tilde{u}_x}{\partial \tilde{y}} = -\frac{\partial \tilde{\omega}}{\partial \tilde{x}} + \frac{\partial^2 \tilde{u}_x}{\partial \tilde{x}^2} + \frac{\partial^2 \tilde{u}_x}{\partial \tilde{y}^2} \quad (2.27)$$

$$\tilde{u}_x \frac{\partial \tilde{u}_y}{\partial \tilde{x}} + \tilde{u}_y \frac{\partial \tilde{u}_y}{\partial \tilde{y}} = \pm Gr \tilde{c} - \frac{\partial \tilde{\omega}}{\partial \tilde{y}} + \frac{\partial^2 \tilde{u}_y}{\partial \tilde{x}^2} + \frac{\partial^2 \tilde{u}_y}{\partial \tilde{y}^2} \quad (2.28)$$

$$\tilde{u}_x \frac{\partial \tilde{c}}{\partial \tilde{x}} + \tilde{u}_y \frac{\partial \tilde{c}}{\partial \tilde{y}} = \frac{1}{Sc} \left( \frac{\partial^2 \tilde{c}}{\partial \tilde{x}^2} + \frac{\partial^2 \tilde{c}}{\partial \tilde{y}^2} \right). \quad (2.29)$$

Hierbei wurden zwei dimensionslose Kennzahlen eingeführt, die Grashof-Zahl  $Gr$  und die Schmidt-Zahl  $Sc$

$$Gr = \left| \frac{\rho_s - \rho_\infty}{\rho_\infty} \right| \frac{gL^3}{\nu^2} \quad (2.30)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D}. \quad (2.31)$$

Die Schmidt-Zahl kann als Verhältnis des Impuls- und Massentransports durch Diffusion interpretiert werden (Bergman et al., 2011) und ist für Gase in der Größenordnung eins, da alle Diffusionsgeschwindigkeiten in Gasen die gleiche Größenordnung haben (Dollet und Boulogne, 2017). Die Grashof-Zahl beschreibt das Verhältnis von den Auftriebskräften zugunsten der Konvektion und den viskosen Kräften zugunsten der Diffusion (ebd.). Für große Grashof-Zahlen wird die Strömung von der natürlichen Konvektion dominiert, während für geringe Grashof-Zahlen die Diffusion des Stoffs dominiert. Da die Grashof-Zahl positiv definiert wurde, gilt das positive Vorzeichen von Gleichung (2.28) für  $\rho_\infty > \rho_s$  und das negative Vorzeichen für  $\rho_\infty < \rho_s$ . Für die vorliegende Betrachtung ist die Dichte im Unendlichen geringer als die Dichte der gesättigten Luft, sodass im Folgenden das positive Vorzeichen genutzt wird. Diese Einschränkung entspricht in der Analogie zur Wärmeübertragung der Betrachtung einer aufrechten, beheizten Platte.

Im nächsten Schritt werden die entdimensionalisierten Variablen mit einer Potenz der Grashof-Zahl reskaliert. Die Potenzen wurden von Dollet und Boulogne (ebd.) übernommen und lauten  $\hat{x} = \tilde{x}$ ,  $\hat{y} = Gr^{1/5} \tilde{y}$ ,  $\hat{u}_x = Gr^{-2/5} \tilde{u}_x$ ,  $\hat{u}_y = Gr^{-1/5} \tilde{u}_y$ ,  $\hat{\omega} = Gr^{-4/5} \tilde{\omega}$  und  $\hat{c} = \tilde{c}$ . Das Einsetzen in die Gleichungen (2.26) bis (2.29) ergibt

$$\frac{\partial \hat{u}_x}{\partial \hat{x}} + \frac{\partial \hat{u}_y}{\partial \hat{y}} = 0 \quad (2.32)$$

$$\hat{u}_x \frac{\partial \hat{u}_x}{\partial \hat{x}} + \hat{u}_y \frac{\partial \hat{u}_x}{\partial \hat{y}} = -\frac{\partial \hat{\omega}}{\partial \hat{x}} + Gr^{-2/5} \frac{\partial^2 \hat{u}_x}{\partial \hat{x}^2} + \frac{\partial^2 \hat{u}_x}{\partial \hat{y}^2} \quad (2.33)$$

$$Gr^{-2/5} \left( \hat{u}_x \frac{\partial \hat{u}_y}{\partial \hat{x}} + \hat{u}_y \frac{\partial \hat{u}_y}{\partial \hat{y}} \right) = \hat{c} - \frac{\partial \hat{\omega}}{\partial \hat{y}} + Gr^{-4/5} \frac{\partial^2 \hat{u}_y}{\partial \hat{x}^2} + Gr^{-2/5} \frac{\partial^2 \hat{u}_y}{\partial \hat{y}^2} \quad (2.34)$$

$$\hat{u}_x \frac{\partial \hat{c}}{\partial \hat{x}} + \hat{u}_y \frac{\partial \hat{c}}{\partial \hat{y}} = \frac{1}{Sc} \left( Gr^{-2/5} \frac{\partial^2 \hat{c}}{\partial \hat{x}^2} + \frac{\partial^2 \hat{c}}{\partial \hat{y}^2} \right). \quad (2.35)$$

Die Skalierungspotenzen werden dabei so gewählt, dass für den Grenzfall  $Gr \rightarrow \infty$  die Kontinuitätsgleichung, ein Reibungsterm in der x-Komponente der inkompressiblen Navier-Stokes-Gleichung sowie der Druck- und Auftriebsterm der y-Komponente erhalten bleiben (Schlichting, Gersten und Krause, 2006). Für große  $Gr$  können die Terme mit den negativen Grashof-Exponenten vernachlässigt werden. Physikalisch lässt sich diese Vereinfachung anhand einer Geometriebetrachtung der Grenzschicht nachvollziehen. Für große Grashof-Zahlen sind die Grenzschichten im Allgemeinen dünn, das heißt die Geschwindigkeitsänderungen senkrecht zur Fluidfilmoberfläche sind viel stärker als die Geschwindigkeitsänderungen parallel zur Fluidfilmoberfläche, also

$$\left| \frac{\partial}{\partial x} \right| \ll \left| \frac{\partial}{\partial y} \right| \quad \text{oder} \quad \left| \frac{\partial v}{\partial x} \right| \ll \left| \frac{\partial v}{\partial y} \right| \quad \text{und} \quad \left| \frac{\partial u}{\partial x} \right| \ll \left| \frac{\partial u}{\partial y} \right|. \quad (2.36)$$

Mithilfe der Kontinuitätsgleichung erhält man außerdem  $|v| \ll |u|$  (Spurk und Aksel, 2010; Mersmann, 1986). Für die Gleichungen (2.33) bis (2.35) gilt im Grenzfall  $Gr \rightarrow \infty$

$$\frac{\partial \hat{u}_x}{\partial \hat{x}} + \frac{\partial \hat{u}_y}{\partial \hat{y}} = 0 \quad (2.37)$$

$$\hat{u}_x \frac{\partial \hat{u}_x}{\partial \hat{x}} + \hat{u}_y \frac{\partial \hat{u}_x}{\partial \hat{y}} = -\frac{\partial \hat{\omega}}{\partial \hat{x}} + \frac{\partial^2 \hat{u}_x}{\partial \hat{y}^2} \quad (2.38)$$

$$0 = \hat{c} - \frac{\partial \hat{\omega}}{\partial \hat{y}} \quad (2.39)$$

$$\hat{u}_x \frac{\partial \hat{c}}{\partial \hat{x}} + \hat{u}_y \frac{\partial \hat{c}}{\partial \hat{y}} = \frac{1}{Sc} \frac{\partial^2 \hat{c}}{\partial \hat{y}^2}. \quad (2.40)$$

Das stark vereinfachte Gleichungssystem besteht weiterhin aus partiellen Differentialgleichungen, wobei die Konzentration über den dimensionslosen hydrodynamischen Druck  $\hat{\omega}$  weiterhin an das Strömungsfeld gekoppelt bleibt (Schlichting, Gersten und Krause, 2006). Um das Gleichungssystem in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen zu wandeln, wird eine Stromfunktion  $\hat{\psi}$  und eine Ähnlichkeitsvariable  $\xi$  eingeführt. Die Stromfunktion ist so definiert, dass die partiellen Ableitungen der Stromfunktion nach den dimensionslosen Ortskoordinaten die Strömungsgeschwindigkeiten ergeben, also (Mersmann, 1986)

$$\hat{u}_x = \frac{\partial \hat{\psi}}{\partial \hat{y}} \quad \text{und} \quad \hat{u}_y = -\frac{\partial \hat{\psi}}{\partial \hat{x}}. \quad (2.41)$$

Ein Vorteil der eingeführten Stromfunktion besteht darin, dass sie die Kontinuitätsgleichung inhärent löst (ebd.). Der folgende Ansatz für die Stromfunktion  $\hat{\psi}$ , den hydrodynamischen Druck  $\hat{\omega}$  und die Ähnlichkeitsvariable  $\xi$  wurde von dem Ansatz von Dholey (2016) abgeleitet

$$\hat{\psi} = \hat{x}^{\bar{m}} f_h(\xi), \quad \hat{\omega} = \hat{x}^{\bar{n}} g_h(\xi), \quad \xi = \hat{x}^{-\bar{n}} \hat{y}, \quad (2.42)$$

wobei  $\bar{m}$  und  $\bar{n}$  reelle Konstanten und  $f_h$  und  $g_h$  Hilfsfunktionen darstellen. Das Einsetzen in die Definition der Stromfunktion (Gleichung (2.41)) ergibt

$$\hat{u}_x = \hat{x}^{\bar{m}-\bar{n}} f_h' \quad (2.43)$$

$$\hat{u}_y = -\hat{x}^{\bar{m}-1} (\bar{m} f_h - \bar{n} \xi f_h'), \quad (2.44)$$

wobei  $f_h'$  die Ableitung der Funktion  $f_h(\xi)$  nach der Ähnlichkeitsvariable  $\xi$  bezeichnet. Die Gleichungen (2.43) und (2.44) lösen die Kontinuitätsgleichung (2.37) für alle Konstanten

$\bar{m}$  und  $\bar{n}$ . Das Einsetzen in die drei weiteren Gleichungen (2.38) bis (2.40) ergibt

$$f_h''' + [\bar{m}f_h f_h'' - (\bar{m} - \bar{n})f_h'^2] = (ng_h - \bar{n}\xi g_h') \quad (2.45)$$

$$g_h' = \hat{c} \quad (2.46)$$

$$\hat{c}'' = -Sc \bar{m} f_h \hat{c}'. \quad (2.47)$$

Während der Umformung der Gleichungen erhält man die Bedingung  $2\bar{m} - 2\bar{n} - 1 = \bar{n} - 1 = \bar{m} - 3\bar{n}$ , das heißt die Konstanten lauten  $\bar{m} = 3/5$  sowie  $\bar{n} = 2/5$ . Bei dem Gleichungssystem (2.45) bis (2.47) handelt es sich um eine gewöhnliche Differentialgleichung dritter Ordnung, eine zweiter Ordnung und eine erster Ordnung. Es lässt sich in ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem von sechs Differentialgleichungen erster Ordnung umschreiben. Für  $f_1 \equiv f_h$  und  $g_1 \equiv g_h$  gilt

$$f_1' = f_h' = f_2 \quad (2.48)$$

$$f_2' = f_h'' = f_3 \quad (2.49)$$

$$f_3' = f_h''' = \frac{2}{5}(g_1 - \xi g_2) - \frac{3}{5}f_1 f_3 + \frac{1}{5}f_2^2 \quad (2.50)$$

$$g_1' = g_h' = g_2 \quad (2.51)$$

$$g_2' = g_h'' = g_3 \quad (2.52)$$

$$g_3' = g_h''' = -Sc \frac{3}{5} f_1 g_3. \quad (2.53)$$

Dieses Gleichungssystem lässt sich unter Beachtung der jeweiligen Randbedingung numerisch lösen. Für die vorliegende Grenzschichtströmung ist die Strömungsgeschwindigkeit an der Fluidfilmoberfläche null und die Stoffmengenkonzentration entspricht der Konzentration des Sättigungsdampfdrucks. Es gilt außerdem  $\lim_{y \rightarrow \infty} u(x,y) = 0$ ,  $\lim_{y \rightarrow \infty} c(x,y) = c_\infty$  und  $\lim_{y \rightarrow \infty} \bar{\omega}(x,y) = 0$ . Aus den genannten Randbedingungen lassen sich mit den Gleichungen (2.42), (2.43), (2.44) und (2.46) Randbedingungen für die eingeführten Funktionen  $f_i$  und  $g_i$  ableiten. Man erhält (Dholey, 2016)

$$f_1(0) = f_h(0) = 0 \quad f_2(0) = f_h'(0) = 0 \quad f_2(\infty) = f_h'(\infty) = 0 \quad (2.54)$$

$$g_1(\infty) = g_h(\infty) = 0 \quad g_2(0) = g_h'(0) = 1 \quad g_2(\infty) = g_h'(\infty) = 0. \quad (2.55)$$

Die Gleichungen (2.48) bis (2.53) lassen sich für die Randbedingungen (2.54) und (2.55) mittels eines Schießverfahrens numerisch lösen (ebd.). Dafür werden die Randbedingungen (2.54) und (2.55) in ein Anfangswertproblem gewandelt, indem zunächst Werte für die fehlenden Funktionswerte bei  $\xi = 0$ , also  $f_3(0)$ ,  $g_1(0)$  und  $g_3(0)$  geschätzt werden. Das Gleichungssystem wird anschließend mittels eines klassischen, vierstufigen Runge-Kutta Integrationsverfahrens gelöst und die geschätzten Funktionswerte mit einer Newton-Raphson Iteration schrittweise verbessert, bis die gegebenen Randbedingungen erfüllt werden. Eine ausführliche Beschreibung des Schießverfahrens kann Gladwell (1980) entnommen werden. Der Algorithmus wurde in Python implementiert und die Lösung für die Schmidt-Zahl  $Sc = 1.14$  berechnet, die in etwa der Schmidt-Zahl von Ethanol in Luft entspricht. Das erhaltene Anfangswertproblem lautet

$$f_1(0) = 0 \quad f_2(0) = 0 \quad f_3(0) = 0,8228 \quad (2.56)$$

$$-g_1(0) = 1,5128 \quad g_2(0) = 1 \quad -g_3(0) = 0,4043. \quad (2.57)$$

Die Abbildung 2.4 zeigt die Funktionen  $f_h(\xi)$  und  $g_h(\xi)$  sowie deren Ableitungen. Die

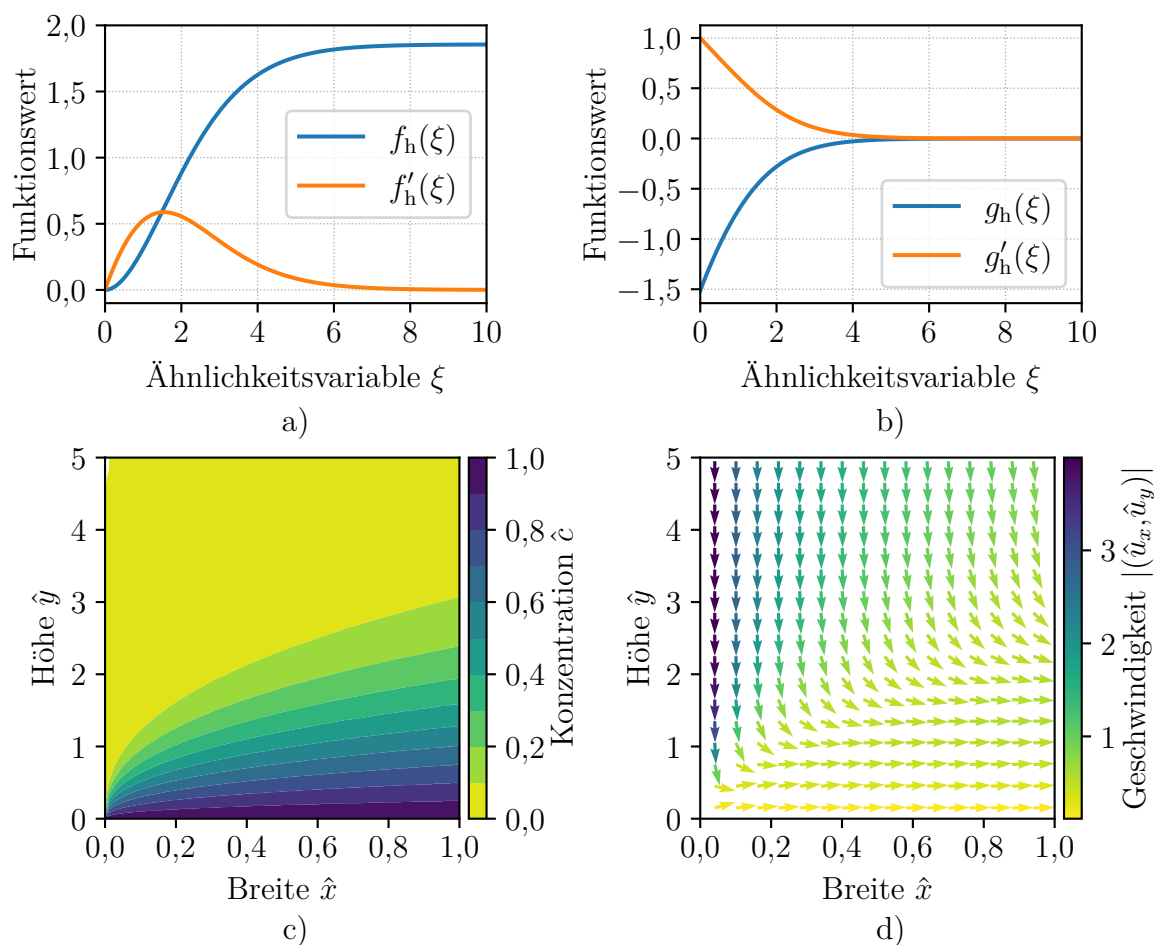


Abbildung 2.4: Die Abbildung zeigt die Lösung der Grenzschichtgleichungen (2.48) bis (2.53) für eine indirekte, natürliche Konvektion über einem horizontalen, halbunendlichen Fluidfilm. Die beiden oberen Graphen zeigen den Verlauf der Hilfsfunktionen  $f_h(\xi)$  und  $g_h(\xi)$  sowie deren Ableitungen (a und b). Transformiert man die Ähnlichkeitsvariable zurück in die dimensionslosen Ortskoordinaten  $\hat{x}$  und  $\hat{y}$  und berechnet die dimensionslose Konzentration  $\hat{c}$  mit Hilfe von Gleichung (2.46), so lässt sich das dimensionslose Konzentrationsfeld darstellen (c). Außerdem wurde mit den Gleichungen (2.43) und (2.44) das dimensionslose Strömungsfeld  $(\hat{u}_x, \hat{u}_y)$  berechnet und dargestellt (d).

dargestellten Funktionen erfüllen die Gleichungen (2.48) bis (2.53) unter den Randbedingungen (2.54) und (2.55). Transformiert man die Ähnlichkeitsvariable zurück in die dimensionslosen Größen  $\hat{x}$  und  $\hat{y}$ , so erhält man das in Abbildung 2.4 c) dargestellte Konzentrationsfeld und das in Abbildung 2.4 d) dargestellte Strömungsfeld über einem horizontalen Fluidfilm. Hierbei gilt zu beachten, dass die erhaltenen Konzentrations- und Strömungsfelder nur innerhalb der Grenzschicht gelten. Insbesondere die großen vertikalen Strömungsgeschwindigkeiten direkt über der Fluidfilmkante (vgl. Abbildung 2.4 d) werden experimentell voraussichtlich nicht bestätigt.

Die dargestellte Lösung gilt nur für den Grenzfall  $Gr \rightarrow \infty$  und einen halbunendlichen Fluidfilm, das heißt, die Strömung über die Kante des Fluidfilms wird nicht von den anderen Kanten des Fluidfilms beeinflusst. Außerdem werden die gewählten Randbe-

dingungen für einen aufrechten, horizontalen Fluidfilm nur erfüllt, falls  $\rho_\infty > \rho_s$ . Falls die Dichte im Unendlichen  $\rho_\infty$  kleiner ist als die Dichte der gesättigten Luft  $\rho_s$  müsste die Gravitationskraft in dem gewählten Koordinatensystem in die positive  $y$ -Richtung zeigen, das heißt der Fluidfilm müsste kopfüber hängen. Eine umfangreiche Diskussion der Grundlagen sowie eine Darstellung unterschiedlicher Fälle von durch Auftriebskräften verursachten Grenzschichtströmungen kann dem Buch von Gebhart (1988) entnommen werden. Wie bereits erwähnt wurde, entspricht die hier beschriebene Grenzschichtströmung der Grenzschichtströmung an einer horizontalen, beheizten Platte. Diese wird neben den bisher genannten Quellen ebenso in Stewartson (1958), Gill, Zeh und Casal (1965) und Rotem und Claassen (1969) adressiert.

Für gedruckte Fluidfilme sind die in diesem Kapitel getroffenen Näherungen teilweise nicht gerechtfertigt, beziehungsweise die implizierten Einschränkungen zu weitreichend, sodass im nächsten Kapitel numerische Lösungen des allgemeineren Gleichungssystems der Gleichungen (2.19) bis (2.22) diskutiert werden.

### 2.3.3 Numerische Simulationen

Die zahlreichen Einschränkungen der vorangegangenen Grenzschichttheorie verringern deren experimentelle Relevanz für die Verdunstung gedruckter Fluidfilme. Für eine allgemeinere Lösung des konvektiven Stofftransports über verdunstenden Fluidfilmen werden deshalb im Folgenden numerische Simulationen diskutiert. Aufgrund des begrenzten Umfangs der numerisch ermittelten Lösungen soll dieser Abschnitt jedoch primär einen Einblick in die Methode geben und die Eignung des Verfahrens für die vorliegende Fragestellung evaluieren. Die in diesem Abschnitt präsentierten numerischen Simulationen wurden im Rahmen einer Kooperation des Sonderforschungsbereichs 1194 (Wechselseitige Beeinflussung von Transport- und Benetzungsvorgängen) von dem Fachgebiet für Mathematische

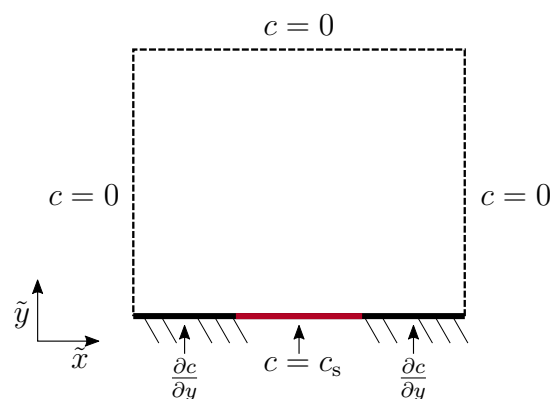


Abbildung 2.5: Die Abbildung zeigt ein Schema des rechteckigen Simulationsgebiets und die gewählten Randbedingungen für die Konzentration des verdunstenden Fluidfilms. Dieser wird mittig an der unteren Grenze des Simulationsgebiets platziert und von einer horizontalen Wand umgeben, die dem Substrat entspricht. Die Konzentration an der Fluidfilmoberfläche entspricht  $c_s$ . Auf dem Substrat ist die Ableitung  $\partial c / \partial y$  null, auf den drei übrigen Rändern des Simulationsgebiets wird die Konzentration des verdunstenden Stoffs null gesetzt.



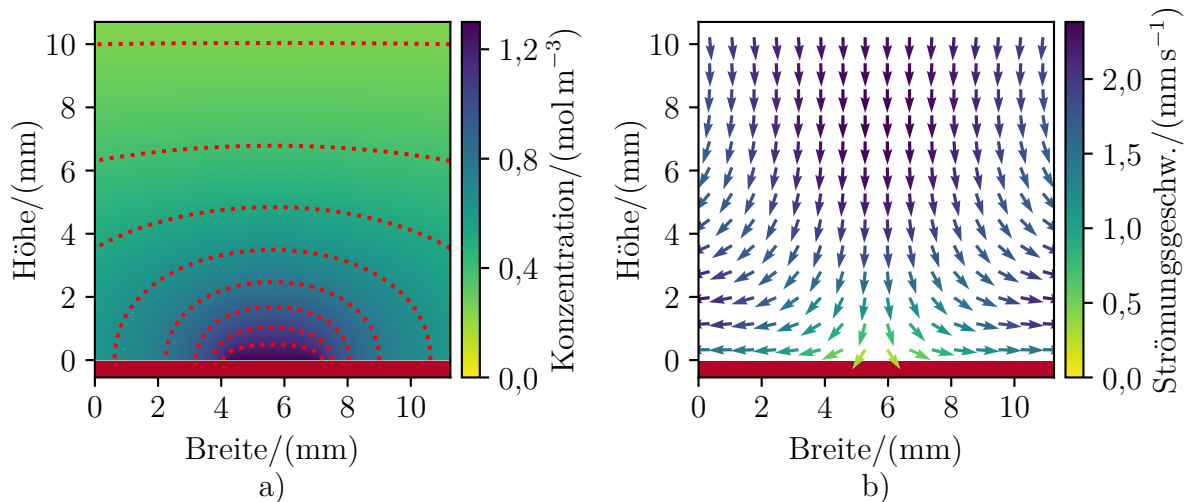


Abbildung 2.6: Die Abbildung zeigt auf der linken Seite die Konzentrationsverteilung (a) und auf der rechten Seite das Strömungsfeld (b) über einem 3 mm breiten, verdunstenden Fluidfilm. Die Dichte der mit Lösungsmittel angereicherten Luft ist höher als die Dichte der reinen Luft und die Gravitationskraft zeigt senkrecht nach unten. Die Abbildungen stellen das Ergebnis der numerischen Simulation für eine zweidimensionale, stationäre Strömung dar.

Modellierung und Analysis der Technischen Universität Darmstadt in enger Absprache mit dem Autor durchgeführt.

Die numerischen Berechnungen werden mit der freien Software OpenFOAM (Open Source Field Operation and Manipulation) in der Version v2112 ausgeführt. OpenFOAM stellt eine objektorientierte C++-Programmiersprache für die Lösung kontinuumsmechanischer Probleme dar (Weller et al., 1998), wobei insbesondere eine Auswahl numerischer Lösungsverfahren für unterschiedliche Problemstellungen bereitgestellt werden. Diese numerischen Lösungsverfahren werden im Folgenden *Solver* genannt. Bei der Verdunstung von Lösungsmitteln aus gedruckten Fluidfilmen werden die dadurch hervorgerufenen Dichteschwankungen der Luft gering ausfallen, weshalb die grundlegenden Gleichungen aus Kapitel 2.3.1 erneut mit Hilfe der Boussinesq-Näherung vereinfacht werden. Dabei wird die Dichte der Luft fast überall als konstant angenommen, außer in der Gewichtskraft, die die natürliche Konvektion antreibt (Dollet und Boulogne, 2017). Die numerischen Berechnungen basieren folglich auf den Gleichungen (2.19) bis (2.22). Die Implementation in OpenFOAM erfolgt durch Anpassung des bereits bestehenden `buoyantBoussinesqPimpleFoam-Solvers`. Dieser *Solver* wird für Problemstellungen der Wärmeübertragung genutzt und kann aufgrund der Analogie der Wärmeübertragung und des Stofftransports mit geringen Modifikationen für die Lösung des konvektiven Stofftransports über verdunstenden Fluidfilmen genutzt werden. Der modifizierte *Solver* wurde vorab durch den Vergleich mit einer analytischen Lösung des rein diffusiven Stofftransports über einer kreisförmigen Scheibe einer verdunstenden Flüssigkeit validiert. Obwohl der *Solver* auch dreidimensionale Problemstellungen lösen kann, werden die Betrachtungen aufgrund der Rechenzeit auf zweidimensionale Simulationen beschränkt.

Die Abbildung 2.5 zeigt ein Schema des rechteckigen Simulationsgebiets und die gewählten

Randbedingungen für die Konzentration des verdunstenden Stoffs. Das rechteckige Simulationsgebiet wird auf der Unterseite durch das Substrat und den Fluidfilm und auf den übrigen drei Seiten durch Luft begrenzt. Der Fluidfilm wird dabei mittig an der Unterseite des Simulationsgebiets platziert und dessen räumliche Struktur vernachlässigt, das heißt es wird keine Höhendifferenz zwischen Substrat und Fluidfilm berücksichtigt. Die Konzentration an der Fluidfilmoberfläche entspricht dem Wert  $c_s$ . Auf der Substratoberfläche wird eine sogenannte Neumann-Bedingung gewählt und somit ein Wert für die Ableitung  $\partial c/\partial y$  vorgegeben. Da der Stoff nicht durch das Substrat diffundieren kann, wird die Ableitung hier null gesetzt. An den drei übrigen Rändern des Simulationsgebiets wird eine Dirichlet-Randbedingung gewählt und heißt der Konzentrationswert wird vorgegeben. Da diese Ränder weit von der Fluidfilmoberfläche entfernt sind, wurde als Konzentrationswert null gewählt. Für die Strömungsgeschwindigkeit wurde auf allen Rändern des Simulationsgebiets eine Dirichlet-Randbedingung gewählt, das heißt die Strömungsgeschwindigkeit beträgt an allen Rändern des Simulationsgebiets null. Die Gesamtgröße des Simulationsgebiets wurde sukzessive vergrößert bis die Randbedingungen einen vernachlässigbaren Einfluss auf das stationäre Strömungsverhalten über dem Fluidfilm zeigten. Für die nachfolgend gezeigten Ergebnisse lag die Breite des Simulationsgebiets bei 203 mm und die Höhe bei 100 mm, wobei die Breite des Fluidfilms 3 mm betrug.

Die Abbildung 2.6 zeigt das Ergebnis der numerischen Berechnungen für eine zweidimensionale, stationäre Strömung über einem 3 mm breiten, verdunstenden Fluidfilm. In Übereinstimmung mit den experimentellen Untersuchungen der vorliegenden Arbeit wird die Verdunstung eines Ethylenglykol-Ethanol-Gemischs simuliert, wobei für Ethanol bei Raumtemperatur (300 K) in etwa ein Sättigungsdampfdruck von 9 kPa beziehungsweise eine Konzentration von  $c_s = 1,3 \text{ mol m}^{-3}$  vorliegt. Die Dichte der gesättigten Luft liegt für diese Konzentration und einen Gesamtdruck von 100,1 kPa bei etwa  $1180 \text{ g m}^{-3}$ , wobei reine Luft bei gleichem Druck eine geringere Dichte von etwa  $1159 \text{ g m}^{-3}$  aufweist. Die Gravitationskraft zeigt senkrecht nach unten und beträgt etwa  $9,81 \text{ m s}^{-2}$ . Der Diffusionskoeffizient von Ethanol in Luft beträgt etwa  $D_{\text{eth,a}} = 1,32 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  und die kinematische Viskosität von Luft etwa  $\nu = 1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  (Lapuerta, Hernández und Agudelo, 2014; Dollet und Boulogne, 2017), sodass die Grashof-Zahl  $Gr = 2,8$  etwas größer als eins ist und die Schmidt-Zahl  $Sc = 1,14$  wie für Gase üblich etwa eins beträgt. Die geschilderten Werte wurden als Parameter in der numerischen Simulation berücksichtigt, um die Simulationen auf die experimentellen Untersuchungen abzustimmen.

Die Ergebnisse zeigen, dass die mit Lösungsmittel angereicherte Luft aufgrund des Dichteunterschieds zur reinen Luft nach unten absinkt und über das Substrat abfließt. Verglichen mit einem rein diffusiven Stofftransport wird die Lösungsmittelverteilung durch die natürliche Konvektion vertikal gestaucht und horizontal über das Substrat gestreckt. Da die Grashof-Zahl im vorliegenden Fall etwas größer als eins ist und die Auftriebskräfte daher etwas größer sind als die Trägheitskräfte, fällt dieser Effekt jedoch gering aus.

Die maximale Strömungsgeschwindigkeit im Umfeld des verdunstenden Fluidfilms beträgt nur etwa  $2,4 \text{ mm s}^{-1}$ , sodass die natürliche Konvektion voraussichtlich leicht durch externe Strömungen gestört werden kann. Außerdem nimmt die Lösungsmittelkonzentration zentral über dem Fluidfilm bis zu einer Höhe von 3,5 mm über dem Fluidfilm auf die Hälfte und bis zu einer Höhe von 8,2 mm auf ein Viertel der Konzentration des Sättigungsdampfdrucks ab. Für die experimentelle Untersuchung der zweidimensionalen Konzentrationsverteilung über

einem verdunstenden Fluidfilm bedeutet dies, dass insbesondere der Bereich knapp über dem Fluidfilm physikalisch interessant und die gewählte quadratische Messfenstergröße von  $11,3 \text{ mm} \times 11,3 \text{ mm}$  geeignet ist.

## 2.4 Fourier-Transformation

Die Fourier-Transformation stellt eine essenzielle mathematische Methode der vorliegenden Arbeit dar, weshalb deren mathematische Grundlagen und deren Anwendung auf zweidimensionale Bilddaten im Folgenden kurz erläutert werden.

Die Fourier-Transformation basiert auf dem Sachverhalt, dass sich ein physikalischer Prozess neben einer räumlichen oder zeitlichen Betrachtung auch im Frequenzraum beschreiben lässt. In der Signalverarbeitung ist es für viele Zwecke vorteilhaft, den Darstellungsraum einer räumlichen oder zeitlichen Funktion in den Frequenzraum und zurück zu wechseln. Diese Wechsel werden durch die lineare Fourier-Transformation ermöglicht, wobei die Fourier-Transformation für eine kontinuierliche, eindimensionale, räumliche Funktion  $h(x)$  gegeben ist durch (Press et al., 2007)

$$(\mathcal{F}h)(f_x) = \int_{-\infty}^{\infty} h(x)e^{2\pi i f_x x} dx \quad (2.58)$$

$$h(x) = \int_{-\infty}^{\infty} (\mathcal{F}h)(f_x)e^{-2\pi i f_x x} df_x. \quad (2.59)$$

Hierbei stellt Gleichung (2.58) die Transformation vom Ortsraum in den Frequenzraum und Gleichung (2.59) die Rücktransformation aus dem Frequenzraum in den Ortsraum dar. Falls die Ortsvariable  $x$  in Metern gemessen wird, so wird die Ortsfrequenz  $f_x$  in Schwingungen pro Meter angegeben. Ersetzt man in den Gleichungen die Ortsvariable  $x$  durch die Zeit  $t$ , so erhält man die Fourier-Transformation von einer zeitlichen Funktion  $h_t(t)$  in den Frequenzraum und deren Rücktransformation, wobei sich die Einheiten der Variablen entsprechend anpassen.

Transformiert man eine Ortsfunktion in den Frequenzraum, so erhält man ein Spektrum an Sinusschwingungen mit unterschiedlichen Frequenzen, Amplituden und Phasenverschiebungen, wobei die ursprüngliche Ortsfunktion durch die simultane Überlagerung der einzelnen Schwingungen erhalten wird. Die Darstellung im Frequenzraum kann beispielsweise helfen, regelmäßige Beiträge in einem schwankenden Signal zu identifizieren und dadurch die Interpretation eines Signals vereinfachen (Bracewell, 1989). Außerdem kann die Fourier-Transformation eingesetzt werden, um den Rechenaufwand einer Faltungsoperation erheblich zu reduzieren. Die Faltung stellt eine der bedeutendsten Operationen der Signalverarbeitung dar und ist für eindimensionale, kontinuierliche Signale definiert durch (Jähne, 2012)

$$(h * g_c)(x) = \int_{-\infty}^{\infty} g_c(x')h(x - x') dx', \quad (2.60)$$

wobei die Funktion  $g_c$  als Faltungsmaske bezeichnet wird und üblicherweise nur in einem kleinen Bereich um den Nullpunkt von null verschieden ist. Die Faltung wird in der Bildverarbeitung beispielsweise beim Glätten oder Schärfen eines Bildes oder bei der Kantenerkennung eingesetzt. Gemäß des sogenannten Faltungstheorems ist die Faltung zweier

Funktionen im Ortsraum äquivalent zu der komplexen Multiplikation im Frequenzraum, sodass (Osgood, 2007)

$$(\mathcal{F}(h * g_c))(f_x) = (\mathcal{F}h)(f_x) (\mathcal{F}g_c)(f_x). \quad (2.61)$$

Insbesondere aufgrund einer effektiven Implementation der Fourier-Transformation lassen sich Faltungsoperationen mithilfe des Faltungstheorems beschleunigen, sodass viele Programme und Bibliotheken die durch das Faltungstheorem vereinfachte Berechnung nutzen.

Die gegebenen Definitionen der Fourier-Transformation sowie der Faltung gelten zunächst nur für kontinuierliche Signale. In der Signal- und Bildverarbeitung werden jedoch im Allgemeinen diskrete Signale gemessen, das heißt ein kontinuierliches Signal wird in bestimmten, meist festen Intervallen innerhalb einer gewissen Messdauer oder innerhalb eines räumlichen Messfensters abgetastet. Bei einer Bildaufnahme handelt es sich beispielsweise um eine zweidimensionale Matrix an Graustufenwerten, die durch die Sensorauflösung, die räumlichen Maße des Sensors sowie die Ausleseelektronik diskretisiert werden. Wird eine kontinuierliche Funktion  $h(x)$  mit einem Abtastintervall  $\Delta$  abgetastet, so ist die höchste im kontinuierlichen Signal identifizierbare Frequenz gegeben durch die halbe Abtastfrequenz

$$f_{Ny} = \frac{1}{2\Delta}. \quad (2.62)$$

Diese Frequenz wird in der Signaltheorie Nyquist-Frequenz genannt. Wird eine eindimensionale Funktion im Ortsraum insgesamt  $N$ -mal abgetastet, so lassen sich daraus maximal  $N$ -Werte im Frequenzraum ableiten. Die Nyquist-Frequenz darf dabei nicht überschritten werden, sodass die diskreten Abtastwerte im Frequenzraum  $f_k$  folgendermaßen gewählt werden (Press et al., 2007)

$$f_k = \frac{k}{N\Delta}, \quad (2.63)$$

wobei der ganzzahlige Index  $k$  Werte zwischen  $-N/2$  und  $N/2$  annimmt, das heißt  $k = -N/2, \dots, N/2$ . Ist die kontinuierliche Funktion  $h(x)$  nur in einem endlichen Intervall von null verschieden, so muss das gesamte von null verschiedene Intervall von der Abtastung abgedeckt werden. Kann die Funktion hingegen periodisch fortgesetzt werden, so muss das abgetastete Intervall typisch für den weiteren Verlauf sein (ebd.). Unter den genannten Bedingungen kann das uneigentliche Integral der kontinuierlichen Fourier-Transformation in Gleichung (2.58) mithilfe einer endlichen Summe approximiert werden (ebd.)

$$(\mathcal{F}h)(f_k) = \int_{-\infty}^{\infty} h(x) e^{2\pi i f_k x} dx \approx \Delta \sum_{j=0}^{N-1} h(x_j) e^{2\pi i f_k x_j} = \Delta \sum_{j=0}^{N-1} h(x_j) e^{\frac{2\pi i}{N} k j}, \quad (2.64)$$

wobei  $x_j = j\Delta$  und der ganzzahlige Index  $j = 0, \dots, N - 1$ . Die Näherung (2.64) wird genutzt, um die Gleichungen (2.58) und (2.59) zu diskretisieren. Die diskrete Fourier-Transformation  $\mathcal{F}_d$  einer eindimensionalen, diskreten Funktion  $h_d(n)$  lautet (ebd.)

$$(\mathcal{F}_d h_d)(f_n) = \sum_{n=0}^{N-1} h_d(n) e^{\frac{2\pi i}{N} f_n n} \quad (2.65)$$

$$h_d(n) = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} (\mathcal{F}_d h_d)(f_n) e^{-\frac{2\pi i}{N} f_n n}, \quad (2.66)$$

wobei Gleichung (2.65) die Hintransformation und Gleichung (2.66) die Rücktransformation darstellt. Die Variablen  $n$  und  $f_n$  sind ganzzahlig und dimensionslos und bezeichnen den  $n$ -ten Abtastwert im Ortsraum beziehungsweise das  $f_n$ -te Frequenzband. Das Abtastintervall  $\Delta$  wurde nicht in die Definition übernommen, sodass die Funktionswerte der kontinuierlichen Fourier-Transformation von den Funktionswerten der diskreten Fourier-Transformation etwa um diesen Faktor abweichen werden, sofern die diskreten Funktionswerte als Abtastung einer kontinuierlichen Funktion betrachtet werden (ebd.).

Die diskrete Fourier-Transformation liefert nur dann eindeutige Ergebnisse, falls die maximale Frequenz der abgetasteten Funktion die Nyquist-Frequenz nicht übersteigt. Verkleinert man das Abtastintervall im Ortsraum, so wächst die Größe des Frequenzraums und erhöht man die Länge der Abtastung im Ortsraum, so wird die Auflösung im Frequenzraum verbessert (Jähne, 2012). Für die zweidimensionale, diskrete Fourier-Transformation (2D-DFT) einer diskreten Funktion  $h_d(m, n)$  ergibt sich analog zu der eindimensionalen Transformation (Press et al., 2007)

$$(\mathcal{F}_d h_d)(f_m, f_n) = \sum_{m=0}^{M-1} \sum_{n=0}^{N-1} h_d(m, n) e^{\frac{2\pi i}{N} f_n n} e^{\frac{2\pi i}{M} f_m m} \quad (2.67)$$

$$h_d(m, n) = \frac{1}{NM} \sum_{m=0}^{M-1} \sum_{n=0}^{N-1} (\mathcal{F}_d h_d)(f_m, f_n) e^{-\frac{2\pi i}{N} f_n n} e^{-\frac{2\pi i}{M} f_m m}, \quad (2.68)$$

wobei die Parameter  $M$  und  $N$  der Anzahl der diskreten Funktionswerte in der jeweiligen Dimension entsprechen. Bei den Gleichungen (2.65) und (2.66) und den Gleichungen (2.67) und (2.68) existieren in der Fachliteratur unterschiedliche Definitionen, die sich hinsichtlich ihrer Normierung durch die Vorfaktoren  $1/N$  beziehungsweise  $1/(MN)$  unterscheiden. Alternativ zu den hier präsentierten Gleichungen ließe sich bereits die Hintransformation durch den Vorfaktor normieren, der dann bei der Rücktransformation entfiel. Alternativ könnte die Normierung  $1/\sqrt{N}$  beziehungsweise  $1/\sqrt{MN}$  sowohl bei der Hin- als auch bei der Rücktransformation genutzt werden.

Für eine anschauliche Darstellung der Fourier-Transformation werden in den Abbildungen 2.7 und 2.8 Funktionen im Ortsraum mit den diesen Funktionen entsprechenden Funktionen im Frequenzraum gegenübergestellt. Die Funktionen im Frequenzraum wurden mit den Gleichungen (2.65) und (2.67) aus den jeweiligen Funktionen im Ortsraum berechnet. Während es sich bei den Funktionen im Ortsraum um reelwertige Funktionen handelt, sind die Funktionen im Frequenzraum komplex, wobei in den Abbildungen jeweils der Betrag des komplexen Funktionswerts dargestellt wird.

Die Abbildung 2.7 a) zeigt eine Kosinusfunktion mit einer Frequenz von  $f_a = 10 \text{ mm}^{-1}$  und einer Amplitude von 1. Die Funktion lässt sich mit der eulerschen Formel als Summe von komplexen Exponentialfunktionen umschreiben, sodass

$$h_1(x) = \cos(2\pi f_a x) \quad (2.69)$$

$$= \frac{1}{2} \left( e^{2\pi i f_a x} + e^{-2\pi i f_a x} \right). \quad (2.70)$$

Die kontinuierliche Fourier-Transformation dieser Kosinusfunktion berechnet sich gemäß

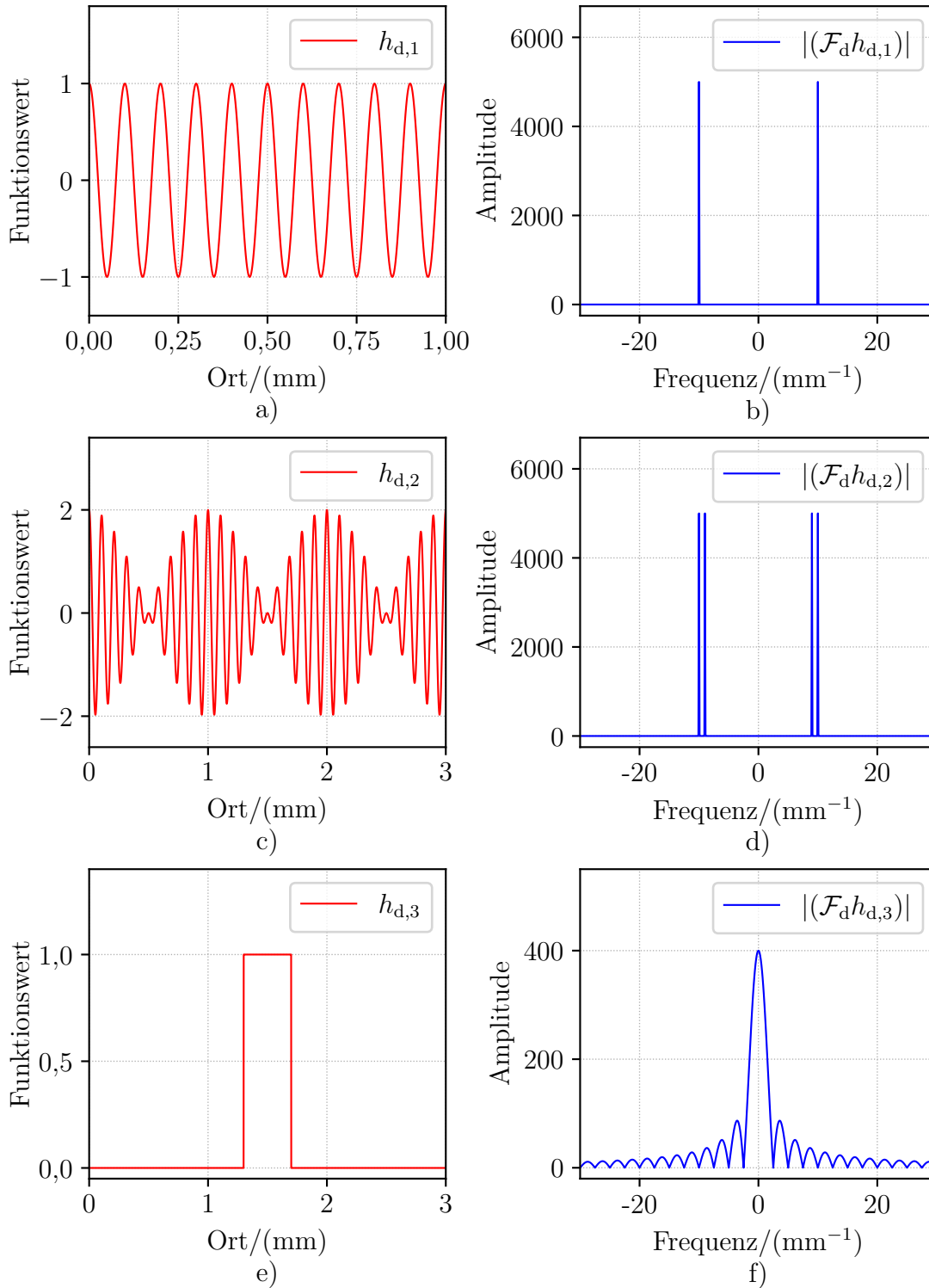


Abbildung 2.7: Die Abbildung zeigt auf der linken Seite drei eindimensionale und diskrete Funktionen  $h_{d,1}$ ,  $h_{d,2}$  und  $h_{d,3}$  im Ortsraum (a, c und e). Auf der rechten Seite werden die Spektren der entsprechenden eindimensionalen, diskreten Fourier-Transformation dargestellt (b, d und f). Bei den Spektren im Frequenzraum wird die Amplitude, also der Betrag des komplexen Funktionswerts, dargestellt. Um die Vergleichbarkeit zu verbessern, werden die abhängigen Variablen dimensionsbehaftet dargestellt, das heißt der Index des diskreten Funktionswerts  $n$  wurde mit der Abtastrate  $\Delta = 1 \mu\text{m}$  multipliziert.

Gleichung (2.58), also

$$(\mathcal{F}h_1)(f_x) = \int_{-\infty}^{\infty} h_1(x) e^{2\pi i f_x x} dx \quad (2.71)$$

$$= \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} (e^{2\pi i f_a x} + e^{-2\pi i f_a x}) e^{2\pi i f_x x} dx \quad (2.72)$$

$$= \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{2\pi i (f_x + f_a)x} + e^{-2\pi i (f_x - f_a)x} dx \quad (2.73)$$

$$= \frac{1}{2} [\delta(f_x + f_a) + \delta(f_x - f_a)]. \quad (2.74)$$

Es wird deutlich, dass die Fourier-Transformation der Kosinusfunktion genau dann ungleich null ist, falls  $f_x = \pm f_a$ . Dieser Sachverhalt zeigt sich ebenfalls in der Darstellung der Amplituden der diskreten Fourier-Transformation in Abbildung 2.7 b). Um die Amplituden der dargestellten diskreten Fourier-Transformation zu berechnen, müssen die Vorfaktoren der Dirac-Funktionen der Gleichung (2.74) durch die Anzahl der Abtastwerte  $N$  dividiert werden. Die kontinuierliche Funktion  $h_1(x)$  wurde mit einem Abtastintervall von  $\Delta = 1 \mu\text{m}$  über eine Länge von 10 mm abgetastet, sodass in diesem Fall insgesamt  $N = 10000$  Abtastwerte vorliegen.

Überlagert man die eben diskutierte Kosinusfunktion mit einer zweiten Kosinusfunktion mit der gleichen Amplitude und einer ähnlichen Frequenz, so erhält man im Ortsraum eine Schwebung (vgl. Abbildung 2.7 c). Die beiden Frequenzen der Schwebung betragen  $f_a = 10 \text{ mm}^{-1}$  und  $f_b = 9 \text{ mm}^{-1}$ , sodass die in Abbildung 2.7 d) dargestellte diskrete Fourier-Transformation für die Frequenzwerte  $f_x = \pm f_a$  und  $f_x = \pm f_b$  Funktionswerte ungleich von null aufweist. Die Amplitudenwerte im Frequenzraum entsprechen denen aus Abbildung 2.7 b), da die Amplituden der Kosinusfunktionen sowie die Abtastrate im Ortsraum beibehalten wurden.

Das dritte und letzte Beispiel der eindimensionalen Fourier-Transformation stellt eine Rechteck-Funktion dar, das heißt es liegt eine Funktion  $h_3(x)$  mit endlicher Amplitude für eine endliche Länge vor (vgl. Abbildung 2.7 e). Die Abb. 2.7 f) zeigt das Ergebnis der diskreten Fourier-Transformation der Rechteck-Funktion. Es wird deutlich, dass für die abrupte Änderung des Funktionswerts im Ortsraum viele periodische Signale unterschiedlicher Frequenzen überlagert werden. Für eine instantane Änderung des Funktionswerts im Ortsraum werden Funktionen im gesamten Frequenzbereich zwischen  $-\infty < f_x < \infty$  benötigt, wobei die Amplituden bei höheren Frequenzen gegen null abfallen. Verringert man die Breite der Rechteck-Funktion, so wird die Spektralfunktion breiter und umgekehrt.

Um neben der eindimensionalen Fourier-Transformation auch die zweidimensionale Fourier-Transformation zu visualisieren, werden in Abbildung 2.8 computergenerierte, ideale Bilddaten den Spektren der 2D-DFT gegenübergestellt. Die generierten Bilder haben eine Größe von  $1001 \times 1001$  Pixel, eine Pixelgröße von etwa  $2,5 \mu\text{m}$  und die einzelnen Graustufenwerte haben eine Datentiefe von 8 bit. Da es sich bei Bilddaten im Allgemeinen um reelwertige Matrizen handelt, ist die 2D-DFT hermitesch, das heißt der komplexe Wert für eine bestimmte Frequenz entspricht dem komplex konjugierten Wert der negativen Frequenz (Jähne, 2012). Für die gewählte Darstellung des Amplitudenspektrums ergibt sich eine Punktsymmetrie bezüglich des Ursprungs  $(0, 0)$ .

In Abbildung 2.8 a) werden die computergenerierten Bilddaten eines vertikales Interferenz-

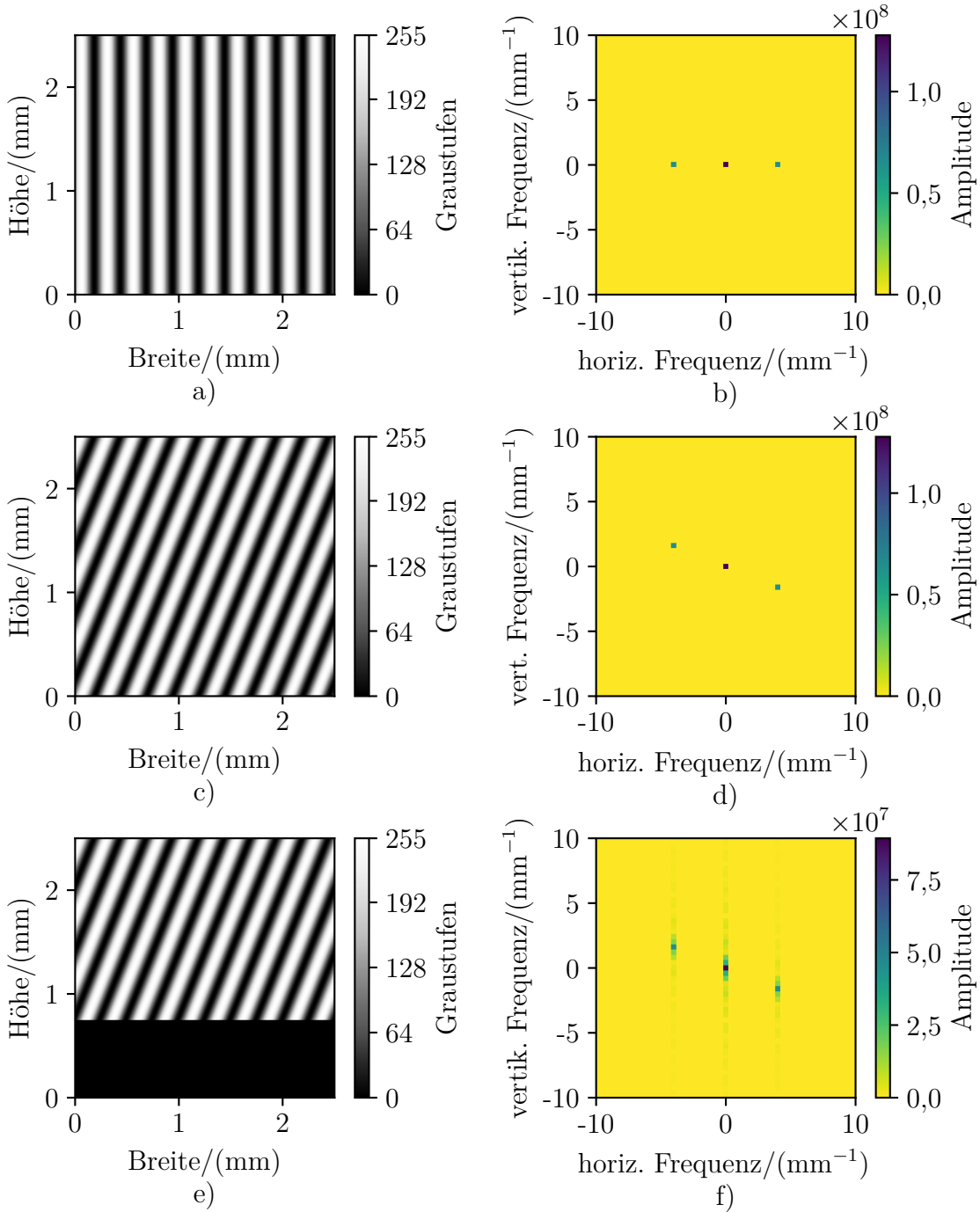


Abbildung 2.8: Die Abbildung zeigt auf der linken Seite drei zweidimensionale, computergenerierte und diskrete Bilddaten (a, c und e) und auf der rechten Seite die entsprechenden Spektren der zweidimensionalen, diskreten Fourier-Transformation (b, d und f). Bei den Spektren im Frequenzraum wird die Amplitude, also der Betrag des komplexen Funktionswerts, dargestellt.



musters gezeigt. Die Frequenz und die Amplitude der sinusförmigen Schwingung betragen etwa  $4 \text{ mm}^{-1}$  und 127,5 Graustufen. Da der mittlere Graustufenwert des Bildes von null abweicht, können in der Abbildung 2.8 b) drei Frequenzen mit Amplituden ungleich von null identifiziert werden. Während die beiden äußeren Frequenzen der Sinusschwingung im Ortsraum entsprechen, repräsentiert der Amplitudenwert im Ursprung die mittlere Graustufenintensität des Bildes. Da die Interferenzstreifen vertikal verlaufen, befinden sich alle Frequenzbeiträge im Frequenzraum auf der horizontalen Achse. Treten die Interferenzstreifen im Ortsraum in einem endlichen Winkel gegenüber der Horizontalen auf (vgl. Abbildung 2.8 c), so verschieben sich auch die Frequenzbeiträge im Frequenzraum (vgl. Abbildung 2.8 d). Zieht man im Frequenzraum eine Linie zwischen einem der äußeren Amplitudenwerte und dem Amplitudenwert im Ursprung, so entspricht die Länge dieser Linie der Frequenz der Schwingung und die Neigung der Linie gegenüber der Horizontalen dem endlichen Neigungswinkel der Interferenzstreifen.

Bei den bisher betrachteten Beispielen der eindimensionalen und zweidimensionalen Fourier-Transformation handelte es sich bei den Funktionen im Ortsraum entweder um Funktionen, die nur in einem endlichen Intervall von null verschieden waren, oder die Funktionen konnten ohne Randeffekte periodisch fortgesetzt werden. Hierdurch waren die Fourier-Transformationen eindeutig und die einzelnen Frequenzbeiträge konnten den entsprechenden Eigenschaften der Ortsraumfunktion klar zugeordnet werden. Setzt man den unteren Bereich des Bildes auf null, so wird die in Abbildung 2.8 c) vorhandene Periodizität partiell zerstört (vgl. Abbildung 2.8 e). Die Abbildung 2.8 f) zeigt das Frequenzspektrum des teilweise null gesetzten Interferenzmusters. Verglichen mit dem Spektrum in Abbildung 2.8 d) kommt es zu einer Aufspaltung der einzelnen Frequenzbeiträge im Frequenzraum, wobei die Frequenzbeiträge des ursprünglichen Frequenzmusters weiterhin die höchsten Amplitudenwerte aufweisen.

Um die unerwünschten Randeffekte der ein- und zweidimensionalen Fourier-Transformation zu reduzieren, lassen sich frequenzbasierte Filter, Schwellwertverfahren im Frequenzraum oder Fensterfunktionen nutzen. Bei letzterem wird für jedes Pixel des Interferogramms ein Fenster aus dem Interferogramm ausgeschnitten und die lokale Fourier-Transformation des Fensters berechnet. Das Fenster wird dabei im Allgemeinen mit einer Fensterfunktion  $g_f(x,y)$  ausgeschnitten und die einzelnen Beiträge so gewichtet, dass die Ränder des Fensters auf null abfallen. Diese lokale Fourier-Transformation wird als *Windowed-Fourier-Transformation* bezeichnet und deren Hin- und Rücktransformationen lauten (Kemaio, 2013)

$$(\mathcal{W}h)(x', y', f_x, f_y) = \iint_{-\infty}^{\infty} h(x, y) g_f(x - x', y - y') e^{2\pi i(f_x x + f_y y)} dx dy. \quad (2.75)$$

$$h(x, y) = \iiint_{-\infty}^{\infty} (\mathcal{W}h)(x', y', f_x, f_y) g_f(x - x', y - y') e^{-2\pi i(f_x x + f_y y)} df_x df_y dx' dy' \quad (2.76)$$

Die *Windowed-Fourier-Transformation* wird in der Fachliteratur teilweise auch Kurzzeit-Fourier-Transformation genannt und bietet neben einer spektralen Auflösung auch eine räumliche oder zeitliche Auflösung des Signals. Verkleinert man die Fenstergröße, so erhöht man die räumliche Auflösung und reduziert gleichzeitig die spektrale Auflösung. Umgekehrt erhöht man mit einem größeren Fenster die spektrale Auflösung und reduziert gleichzeitig die räumliche Auflösung. Wählt man als Fensterfunktion eine Gaußfunktion, so bezeichnet man diese spezielle lokale Fourier-Transformation als Gabor-Transformation.

Nähere Informationen zu der Gabor-Transformation können dem Kapitel 4.2.2 sowie dem Buch von Kemaio (2013) entnommen werden.

## 2.5 Stand der Wissenschaft

Der Kern der vorliegenden Arbeit umfasst die Beobachtung und Analyse der Verdunstung gedruckter Fluidfilme, um darauf aufbauend Verbesserungen des Trocknungsprozesses und somit homogenere gedruckte Strukturen zu ermöglichen. In diesem Kapitel wird die vorliegende Arbeit in den Kontext wissenschaftlicher Arbeiten eingeordnet. Viele wissenschaftliche Arbeiten beschäftigen sich mit der Dynamik der Fluidübertragung im Druckprozess (Qin et al., 2019; Schäfer, 2020; Brumm et al., 2023), der Dynamik des Fluidfilms während des Trocknungsvorgangs (Deegan et al., 1997; Howison et al., 1997; Eres, Weidner und Schwartz, 1999; Hernandez-Sosa et al., 2013; Sauer, Braig und Dörsam, 2021) sowie der Qualitätskontrolle der getrockneten, gedruckten Schicht (Merklein et al., 2019; Daume, 2020; Zhuldybina, Ropagnol und Blanchard, 2021). Die vorliegende Arbeit ergänzt diese Veröffentlichungen hinsichtlich der Beobachtung und der Analyse des Lösungsmitteldampfs über einem verdunstenden Fluidfilm, da die Verteilung des Lösungsmitteldampfs einen maßgeblichen Einfluss auf die Dynamik des verdunstenden Fluidfilms und damit auch auf das Druckergebnis hat.

Die Arbeitsgruppe von Pierre Colinet und Sam Dehaeck an der Université libre de Bruxelles forscht an Verdunstungs- und Trocknungsvorgängen und hat bedeutende Forschungsergebnisse zu der räumlich aufgelösten Messung der Dampfkonzentration über volatilen Tröpfchen veröffentlicht. Der messtechnische Ansatz ähnelt dabei dem in dieser Arbeit gewählten Ansatz. Mittels eines Mach-Zehnder-Interferometers werden Interferogramme erzeugt, wobei die optischen Weglängenunterschiede zwischen dem Referenzarm und dem Messarm des Interferometers aus den Interferogrammen rekonstruiert werden. Die optischen Weglängenunterschiede werden anschließend in die gewünschte Messgröße, das heißt in die Konzentration des flüssigen oder gasförmigen Stoffs, umgerechnet. Als Lichtquelle des Interferometers wird ein roter He-Ne-Laser oder eine rote Laserdiode eingesetzt.

Eine der ersten Veröffentlichungen mit dem beschriebenen Messaufbau untersucht Konzentrationsgradienten in der flüssigen Phase eines binären Lösungsmittelgemischs aus Wasser und Ethanol (Dehaeck, Wylock und Colinet, 2008). Durch die stärkere Verdunstung des Ethanols bei gleicher Temperatur sinkt dessen Konzentration an der Fluidoberfläche. Aufgrund dessen entstehen konvektive Strömungen im Fluid. Die Strömungen werden indirekt über eine zeitliche Darstellung der zweidimensionalen Konzentrationsverteilung des Ethanols in dem Lösungsmittelgemisch visualisiert. Der gleiche Messaufbau wird in einer weiteren Veröffentlichung genutzt, um die Phänomene bei der Absorption von Gasen in Flüssigkeiten in Verbindung mit chemischen Reaktionen in der Flüssigkeit zu untersuchen (Wylock et al., 2011). In beiden Veröffentlichungen wird eine Hele-Shaw-Zelle im Messarm des Interferometers platziert, um die Flüssigkeiten zu untersuchen. In den folgenden Veröffentlichungen wird diese Zelle durch ein Substrat oder eine Kanüle ersetzt, um die Untersuchung von liegenden oder hängenden Tropfen zu ermöglichen. Hierbei wird nicht die Konzentration in der flüssigen Phase, sondern die Dampfkonzentration in der Gasphase in der Umgebung des Tropfens gemessen. Das Messprinzip wurde in Vide-

os, Konferenzbeiträgen und Fachzeitschriften veröffentlicht (Dehaeck und Colinet, 2010; Dehaeck und Colinet, 2012; Dehaeck, Tsoumpas und Colinet, 2013; Dehaeck, Rednikov und Colinet, 2014). Indem eine Rotationssymmetrie der beobachteten Dampfkonzentration unterstellt wird, kann aus der zweidimensionalen Betrachtung eine dreidimensionale Lösungsmittelverteilung rekonstruiert werden. Da die Durchmesser der Tropfen nur etwa 3 mm bis 5 mm betragen, muss das untersuchte Lösungsmittel einen hohen Dampfdruck besitzen und eine Molrefraktion aufweisen, die sich stark von der mittleren Molrefraktion der umgebenden Luft unterscheidet (vgl. Kapitel 2.2.2 und 3.1.1). Die Autoren nutzen das Fluid Novec HFE-7000, das von dem Hersteller 3M als Wärmeleit- und Lösungsmittel verkauft wird. Da der gesättigte Dampf etwa viermal so schwer ist wie die umgebende Luft, wird die Lösungsmittelverteilung in der Umgebung des Tropfens stark von konvektiven Luftströmungen beeinflusst (Dehaeck, Rednikov und Colinet, 2014).

Weitere Veröffentlichungen der Arbeitsgruppe um Dehaeck befassen sich mit der Verbesserung der Auswertungsalgorithmen der Interferenzmuster (Dehaeck, Tsoumpas und Colinet, 2015; Dehaeck und Colinet, 2016) sowie der Verdunstungsdynamik von benetzenden Tropfen auf geometrisch strukturierten, aber chemisch homogenen Oberflächen (Mekhitarian et al., 2017). Außerdem wurde kürzlich eine Untersuchung der Verdunstung von Tropfen in der Mikrogravitation veröffentlicht, wobei das gleiche Fluid Novec HFE-7000 und ein ähnlicher Versuchsaufbau zu Dehaeck, Rednikov und Colinet (2014) verwendet wurde. Durch den geringen Einfluss der Gravitation in der Höhenforschungsrakete konnte der Einfluss eines elektrischen Feldes auf die Verdunstungsrate des Tropfens evaluiert werden (Garivalis et al., 2022).

Die vorliegende Arbeit grenzt sich von den Veröffentlichungen der Brüsseler Arbeitsgruppe durch einen anderen Interferometeraufbau sowie der Untersuchung anderer Fluidgeometrien ab. Indem ausgedehnte Fluidfilme untersucht werden, wird es möglich, übliche Lösungsmittel im funktionalen Druck zu untersuchen und die inhomogene Verdunstung eines dünnen, ausgedehnten Fluidfilms zu quantifizieren. Die molare Masse des in dieser Arbeit verwendeten Ethanol liegt bei etwa  $46 \text{ g mol}^{-1}$ , wobei die molare Masse des Fluids Novec HFE-7000 bei etwa  $200 \text{ g mol}^{-1}$  liegt, sodass im Allgemeinen bei Ethanol der Einfluss der natürlichen Konvektion auf die Verdunstung weitaus geringer ausfällt (3M, 2021). Außerdem wird für die Rekonstruktion der Konzentrationsverteilung in der vorliegenden Arbeit keine Rotationssymmetrie unterstellt. Es werden stattdessen mehrere Fluidfilme unterschiedlicher Länge gedruckt, um daraus die Konzentration zu berechnen (vgl. Kapitel 4.1).

Neben der Arbeitsgruppe in Brüssel hat bereits O'Brien und Saville (1987) den Dampf von Tropfen von verschiedenen Lösungsmitteln interferometrisch vermessen. Weiterhin wurde in einer aktuelleren Veröffentlichung von Bhatia, Roth und Weigand (2019) ein Weißlicht-Mach-Zehnder-Interferometer eingesetzt, um die Verdunstung aus mit Wasser getränkten porösen Materialien zu beobachten. Diese Veröffentlichungen sind jedoch für die vorliegende Arbeit weniger relevant, weshalb auf eine detaillierte Erläuterung der Inhalte verzichtet wird.

Neben den genannten experimentellen Untersuchungen wurde der Stofftransport über verdunstenden Tropfen und Fluidfilmen auch theoretisch behandelt, wobei insbesondere die Grenzschichttheorie und deren Anwendbarkeit für unterschiedliche Versuchsanordnungen

diskutiert wird. Es werden dabei mehrheitlich thermodynamische Situationen beschrieben, also der Wärmetransport über beheizten und gekühlten Platten. Diese Beschreibungen lassen sich jedoch aufgrund der Analogie der Stoff- und Wärmeübertragung weitestgehend auf verdunstende Fluidfilme übertragen. Neben den bereits in Kapitel 2.3.1 genannten Quellen wird an dieser Stelle besonders auf die Veröffentlichungen von Dholey (2016) und Dollet und Boulogne (2017) verwiesen. Während Dholey (2016) detailliert die Grenzschichtlösungen über beheizten, horizontalen, halbunendlichen Platten für unterschiedliche Temperaturverläufe auf der Oberfläche der Platte berechnet, beschreiben Dollet und Boulogne (2017) die natürliche Konvektion über runden, verdunstenden Fluidfilmen. Dies beinhaltet eine Einteilung der Strömung über dem Fluidfilm in drei Regionen, nämlich einer Randregion, einer mittleren Region, die durch die Grenzschichtlösung charakterisiert ist und einer zentralen Region, bei der die Strömungen gegenüberliegender Seiten aufeinandertreffen. Es wird eine analytische Lösung der Verdunstungsrate für die rein diffusive Verdunstung eines runden Fluidfilms sowie eine Näherungslösung für die Verdunstungsrate unter Berücksichtigung der Konvektion gegeben. Die analytische Lösung wird für die Validierung der numerischen Berechnungen genutzt (vgl. Kapitel 2.3.3).

# 3 Messkonzept und experimenteller Aufbau

Das vorliegende Kapitel beschreibt das Konzept sowie den experimentellen Aufbau des in dieser Arbeit verwendeten optischen Messverfahrens. Es wird zunächst eine kurze Übersicht der physikalischen Grundlagen von der Ausbreitung optischer Strahlung in Stoffgemischen gegeben. Darauf aufbauend wird das Ausmaß unterschiedlicher optischer Effekte (die Verschiebung, Ablenkung und Phasenverschiebung optischer Strahlung) über verdunstenden Fluidfilmen abgeschätzt und daraus das in dieser Arbeit verwendete Messverfahren abgeleitet. Der abgeleitete Versuchsaufbau basiert auf der Phasenverschiebung optischer Strahlung und lässt sich der digitalen, holografischen Interferometrie zuordnen. Für eine reproduzierbare Herstellung und Positionierung der zu vermessenden Fluidfilme wird der optische Versuchsaufbau sowie eine digitale Inkjet-Druckeinheit in die Roboterzelle eines kompakten Sechs-Achs-Roboters integriert. Die einzelnen Komponenten des Versuchsaufbaus werden beschrieben und die eingesetzte Kamera hinsichtlich ihrer Eignung für die Messaufgabe charakterisiert.

## 3.1 Messkonzept

Für das in dieser Arbeit verwendete Messkonzept soll ein optisches Messverfahren genutzt werden. Der Hauptvorteil optischer Verfahren gegenüber taktilen Verfahren besteht neben ihrer hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung darin, dass sie das untersuchte System beziehungsweise den untersuchten Prozess in keiner Weise beeinflussen (Mayinger, Merwes und Feldmann, 2001). Optische Verfahren sind daher sowohl in der Grundlagenforschung als auch in technischen Anwendungen weit verbreitet. Sie nutzen die fundamentalen Eigenschaften optischer Strahlung, das heißt die Amplitude, die Phase, die Wellenlänge, die Richtung, die Frequenz, die Geschwindigkeit, die Polarisation oder die Kohärenz optischer Strahlung und die Änderungen derer um Informationen über die Messgröße zu erhalten (Zuo et al., 2022).

### 3.1.1 Optische Strahlung in Stoffgemischen

Der Begriff optische Strahlung bezeichnet elektromagnetische Strahlung im Bereich zwischen der Röntgenstrahlung und den Radiowellen (ungefähr 1 nm bis 1 mm) und wird oft fälschlicherweise in der Literatur mit dem Begriff Licht gleichgesetzt (Commission Internationale de l'Eclairage, 2020). In der Beschreibung optischer Strahlung wird in der

klassischen Optik zwischen der Strahlenoptik und der Wellenoptik unterschieden. Erstere nähert die Ausbreitung der optischen Strahlung mithilfe von Strahlen an. Diese Näherung ist gerechtfertigt, falls die Wellenlänge der betrachteten Strahlung weitaus größer ist als die betrachteten Strukturgrößen und wird beispielsweise in der Beschreibung von Abbildungsfehlern in der bildgebenden Optik genutzt. In vielen Anwendungen ist diese Näherung jedoch nicht gerechtfertigt und die Ausbreitung der optischen Strahlung muss mit der Wellenoptik beschrieben werden. In nicht ferromagnetischen Materialien unterliegt die Ausbreitung der elektromagnetischen Welle (EM-Welle) der Differenzialgleichung (Demtröder, 2013)

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \epsilon_r \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{\epsilon_r}{c_1^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}. \quad (3.1)$$

Für das magnetische Feld lässt sich eine analoge Gleichung herleiten. Die obige Gleichung (3.1) stellt die Wellengleichung für Wellen in nicht leitender und nicht magnetischer Materie mit dem elektrischen Feld  $\mathbf{E}$ , der frequenz- und stoffabhängigen Permittivitätszahl  $\epsilon_r$ , der elektrischen Feldkonstanten  $\epsilon_0$  und magnetischen Feldkonstanten  $\mu_0$  dar (ebd.). Die Lichtgeschwindigkeit  $c_1$  entspricht dem Kehrwert der Wurzel aus dem Produkt der elektrischen und magnetischen Feldkonstanten. Für eine Herleitung der Gleichung aus den makroskopischen Maxwellgleichungen sowie für nähere Informationen zu den nachfolgenden Gleichungen bezüglich dem Verhalten elektromagnetischer Wellen in Materie sei an dieser Stelle an Stenzel (2022) verwiesen. Beschränkt man die Betrachtung auf harmonische Schwingungen der Felder, so lässt sich die zeitliche Ableitung des elektrischen Feldes durch die quadratische Kreisfrequenz  $-\omega^2$  ersetzen

$$\nabla^2 \mathbf{E} + \frac{\omega^2 \epsilon_r}{c_1^2} \mathbf{E} = 0. \quad (3.2)$$

Die Permittivitätszahl ist dabei im Allgemeinen komplex und dient als Definition des ebenfalls komplexen Brechungsindex  $n_c$

$$\sqrt{\epsilon_r} = n_c = n_r + i\kappa. \quad (3.3)$$

Hierbei lässt sich mithilfe des Brechungsindex  $n_c$  die Phasengeschwindigkeit  $v_{\text{ph}}$  der Welle in der Materie berechnen

$$v_{\text{ph}} = \frac{c_1}{n_c}. \quad (3.4)$$

Der Imaginärteil des Brechungsindex  $\kappa$  bezeichnet ein Maß für die Dämpfung der elektromagnetischen Welle und wird im Rahmen dieser Dissertation als Extinktionskoeffizient bezeichnet. Ist die Permittivitätszahl räumlich konstant, so stellt eine ebene Welle eine mögliche Lösung der Gleichung (3.2) dar

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \cdot e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}. \quad (3.5)$$

Hierbei bezeichnet  $\mathbf{E}_0$  die Amplitude der elektrischen Feldstärke,  $\mathbf{k}$  den Wellenvektor,  $\mathbf{r}$  den Ortsvektor und  $t$  die Zeit, es gilt  $|\mathbf{k}| = \pm \omega n_c / c_1$ . Bewegt sich die ebene Welle geradlinig in positiver Richtung entlang der  $z$ -Achse, so erhält man mithilfe der Gleichung (3.3)

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cdot e^{-\frac{\omega}{c_1} \kappa z} \cdot e^{-i\left(\omega t - \frac{\omega}{c_1} n_r z\right)}. \quad (3.6)$$

Die erste Exponentialfunktion stellt dabei die exponentielle Abschwächung der Welle dar und die zweite Exponentialfunktion beschreibt das Schwingungsverhalten des elektrischen Feldes. Das Verhalten optischer Strahlung in Materie wird maßgeblich von der

komplexen Permittivitätszahl bestimmt. Beobachtet man das Verhalten monochromatischer elektromagnetischer Strahlung in Materie, so lässt sich die Permittivitätszahl für die entsprechende Wellenlänge der Strahlung bestimmen. Hieraus lassen sich wiederum weitere Kenngrößen der Materie wie beispielsweise Temperatur, Konzentration oder Stoffzusammensetzung bestimmen. Dieser Sachverhalt wird in dieser Arbeit genutzt, um die Konzentrationserteilung des Lösungsmitteldampfs über einem dünnen, verdunstenden Fluidfilm optisch zu bestimmen. Die folgende Clausius-Mosotti-Gleichung verknüpft die makroskopische Permittivitätszahl mit der mikroskopischen Polarisierbarkeit eines Atoms  $\alpha$  und der Teilchenzahldichte  $N$  (Aspnes, 1982)

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{1}{3\epsilon_0} N\alpha. \quad (3.7)$$

Die obige Gleichung stellt die Clausius-Mosotti-Gleichung im SI-Einheitensystem dar. Historisch bedingt und aufgrund der praktischen Einheit wird die atomare Polarisierbarkeit jedoch häufig im CGS-Einheitensystem angegeben. Im CGS-System lautet Gleichung (3.7)

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{4\pi}{3} N\alpha'. \quad (3.8)$$

Die atomare SI-Polarisierbarkeit  $\alpha$  unterscheidet sich dabei von der atomaren CGS-Polarisierbarkeit  $\alpha'$  gemäß der Definition um einen Faktor  $1/(4\pi\epsilon_0)$ . Insbesondere bei älteren Quellen gilt es daher das verwendete Einheitensystem beziehungsweise die verwendete Definition zu berücksichtigen (Atkins und Paula, 2006). Neben der atomaren Polarisierbarkeit wird in diesem Zusammenhang auch die Molrefraktion  $P$  genutzt (Born, 1972)

$$P = \frac{4\pi}{3} N_A \alpha'. \quad (3.9)$$

Hierbei stellt  $N_A$  die Avogadro-Konstante dar, also die Anzahl an Teilchen pro Mol. Substituiert man die atomare Polarisierbarkeit in Gleichung (3.8) mit der Molrefraktion und nutzt Gleichung (3.3), um die Permittivitätszahl mit dem Brechungsindex zu ersetzen, so erhält man

$$\frac{n_c^2 - 1}{n_c^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} N\alpha' = \frac{N}{N_A} P. \quad (3.10)$$

Obige Gleichung, also die Abhängigkeit des Brechungsindex  $n_c$  von der atomaren Polarisierbarkeit  $\alpha'$ , wird in der Literatur Lorentz-Lorenz-Gesetz genannt (Kragh, 2018). Handelt es sich bei dem untersuchten Medium um eine Zusammensetzung mehrerer Stoffe, so kann der Brechungsindex des Stoffgemischs folgendermaßen angenähert werden (Aspnes, 1982)

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{n_c^2 - 1}{n_c^2 + 2} = \sum_i \varphi_i \frac{n_{c,i}^2 - 1}{n_{c,i}^2 + 2} = \sum_i \frac{N_i}{N_A} P_i. \quad (3.11)$$

Hierbei stellt  $N_i$  die Teilchenzahldichte,  $P_i$  die Molrefraktion und  $\varphi_i = N_i/(\sum_j N_j)$  den Volumenanteil des Stoffs  $i$  des Stoffgemischs dar. Bei dem Brechungsindex  $n_{c,i}$  handelt es sich um den Brechungsindex des reinen Stoffs  $i$ . Man erhält obige Formel, indem man ein effektives Medium betrachtet, bei dem die Beiträge einzelner Atome unterschiedlicher Stoffe überlagert werden, ohne dass die jeweilige atomare Polarisierbarkeit von der des reinen Stoffs abweicht. Diese Näherung ist insbesondere für Stoffgemische geringer Dichte, also für Gase, zutreffend (Stenzel, 2022). Neben der hier beschriebenen Näherung gibt es weitere Ansätze für die Berechnung der optischen Eigenschaften von Stoffgemischen, die

sich für unterschiedliche Anwendungen eignen. Nähere Informationen können beispielsweise Aspnes (1982) und Stenzel (2022) entnommen werden.

Das Verhältnis der Teilchenzahldichte und der Avogadro-Konstante in Gleichung (3.11) kann alternativ durch das Verhältnis der Dichte  $\rho_i$  und der molaren Masse  $M_{m,i}$  des entsprechenden Stoffs  $i$  dargestellt oder mithilfe der allgemeinen Gasgleichung mittels des Partialdrucks  $p_i$ , der Temperatur  $T$  und der universellen Gaskonstante  $R$  ausgedrückt werden. Außerdem liegt der Brechungsindex für Gase nahe eins, sodass sich der Nenner im zweiten Term der Gleichung (3.11) näherungsweise durch den Wert drei ersetzen lässt

$$\frac{n_c^2 - 1}{3} = \sum_i \frac{\rho_i}{M_{m,i}} P_i = \frac{1}{RT} \sum_i p_i P_i. \quad (3.12)$$

Gleichung (3.12) ermöglicht über die experimentelle Bestimmung des Brechungsindex quantitative Aussagen über die Stoffzusammensetzung eines Gasgemischs und stellt daher eine essenzielle Gleichung für die vorliegende Arbeit dar. Ein verdunstender Fluidfilm erzeugt eine inhomogene Lösungsmitteldampfverteilung über dem Film (vgl. Kapitel 2.2). Diese im Allgemeinen dreidimensionale Lösungsmitteldampfverteilung erzeugt gemäß Gleichung (3.12) eine ebenfalls dreidimensionale Verteilung des Brechungsindex. Trifft eine ebene Welle auf solch ein räumlich inhomogenes Medium, so wird die optische Wellenfront verzerrt. Zusätzlich zu der Änderung der Phasengeschwindigkeit und der Abschwächung der EM-Welle kommt es zu einer Ablenkung und Verschiebung der elektromagnetischen Welle. Im folgenden Abschnitt wird das Ausmaß der weiteren Effekte für den Fall verdunstender Fluidfilme abgeschätzt und verglichen, sodass auf Basis dessen ein geeignetes Messverfahren abgeleitet werden kann.

### 3.1.2 Abschätzung optischer Effekte über verdunstendem Fluidfilm

Im Folgenden werden die Effekte der Verschiebung, der Ablenkung und der Phasenverschiebung optischer Strahlung über verdunstenden Fluidfilmen abgeschätzt. Alle drei Effekte wurden bereits vielfach in optischen Messverfahren und der Strömungsvisualisierung eingesetzt. So basieren sogenannte Schattenverfahren auf der Verschiebung, Schlierenverfahren auf der Ablenkung und interferometrische Verfahren auf der Phasenverschiebung elektromagnetischer Wellen (Goldhahn, 2009). Zusätzlich zu den drei genannten Effekten tritt im Allgemeinen eine Abschwächung der elektromagnetischen Welle durch Absorption auf. Da der Absorptionskoeffizient von Wasser und von organischen Lösungsmitteln im sichtbaren Wellenlängenbereich sehr klein ist (Cabrera et al., 2018), die Lösungsmittelkonzentrationen über dem Fluidfilm sehr gering sind und die experimentelle Komplexität räumlich hochauflösender Absorptionsmessungen im nahen Infrarotbereich hoch ist, werden Absorptionsmessungen ausgeschlossen. Aufgrund der geringen Abschwächung der EM-Welle werden im Folgenden der komplexe Teil des Brechungsindex sowie der komplexe Teil der Molrefraktion vernachlässigt.

Für die Abschätzung der Effekte wird auf ein vereinfachtes Modell zurückgegriffen, das in Abbildung 3.1 dargestellt ist. Die einfallende optische Strahlung, beziehungsweise eine ebene EM-Welle, trifft dabei senkrecht auf ein Gasgemisch. An der Unterseite des Gasgemischs befindet sich ein verdunstender Lösungsmittelfilm der Länge  $l = 10$  cm.



Die räumliche Verteilung des Lösungsmitteldampfs führt gemäß Gleichung (3.12) zu einem räumlich inhomogenen Brechungsindex. Dieser verzerrt die zuvor ebene Wellenfront und lenkt die EM-Welle in Richtung des optisch dichteren Mediums ab. Je stärker der Brechungsindexgradient ist, desto stärker ist die Auslenkung der EM-Welle. Die Krümmung der Strahlung aufgrund des Brechungsindexgradienten ist gegeben durch (Settles, 2001)

$$\frac{\partial^2 y}{\partial x^2} = \frac{1}{n_c} \frac{\partial n_c}{\partial y}. \quad (3.13)$$

Eine einmalige Integration der Gleichung ergibt für kleine Ablenkungswinkel  $\beta$  (ebd.)

$$\beta \approx \frac{\partial y}{\partial x} = \frac{1}{n_c} \int \frac{\partial n_c}{\partial y} dx. \quad (3.14)$$

Für das in dieser Arbeit verwendete binäre Gemisch aus Ethylenglykol (70 wt%) und Ethanol (30 wt%) beträgt die Stoffmengenkonzentration von Ethanol bei 300 K und dem daraus folgenden Sättigungsdampfdruck von 3,3 kPa etwa  $1,3 \text{ mol m}^{-3}$ . Aufgrund des sehr viel geringeren Sättigungsdampfdrucks von Ethylenglykol von 9 Pa, liegt dessen Stoffmengenkonzentration bei gleicher Temperatur bei etwa  $0,004 \text{ mol m}^{-3}$ , sodass dessen Beitrag zur Änderung des Brechungsindex vernachlässigt wird. Die Werte wurden mithilfe der Parameter der Antoine-Gleichung aus Tabelle 2.1, dem Raoult'schen Gesetz (Gleichung (2.8)) sowie der allgemeinen Gasgleichung berechnet. Numerische Simulationen der Verdunstung ergeben für die maximalen Konzentrationsgradienten an der Benetzungsrandlinie Werte in der Größenordnung von  $1 \cdot 10^3 \text{ mol m}^{-4}$  (vgl. Kapitel 2.3.3). Dies bedeutet, dass die Ethanolkonzentration in einer Höhe von 0,1 mm von  $1,3 \text{ mol m}^{-3}$  auf etwa  $1,2 \text{ mol m}^{-3}$  abgefallen ist. Die Konzentrationsänderung reduziert gleichzeitig den erwarteten Brechungsindex von 1,000 285 1 auf 1,000 283 8. Hierbei wurden die Brechungsindizes mittels der Molrefraktionen in Tabelle 3.1 und der Gleichung (3.12) für einen Gesamtdruck von 101,325 kPa bestimmt. Bei einer Linienlänge von  $l = 10 \text{ cm}$  ergibt sich eine Ablenkung der Strahlung um etwa  $\beta = 0,08^\circ$ . Befindet sich der Detektor beziehungsweise die Kamera in einem Abstand von  $d_1 = 10 \text{ cm}$ , so wird hier eine Verschiebung der EM-Welle von ungefähr

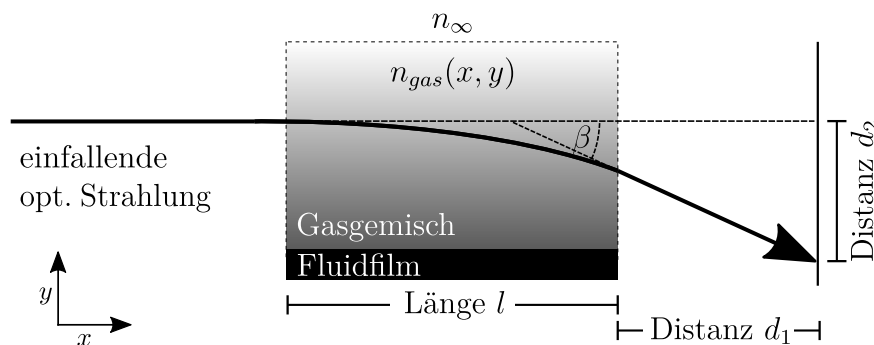


Abbildung 3.1: Vereinfachtes Modell für die Ausbreitung optischer Strahlung in einem inhomogenen Gasgemisch. Der ortsabhängige Brechungsindex des Gasgemischs  $n_{gas}(x,y)$  wird von einem verdunstenden Fluidfilm der Länge  $l$  hervorgerufen. Der Brechungsindex nähert sich mit zunehmendem Abstand von dem Fluidfilm dem Brechungsindex der Umgebung  $n_\infty$  an. Die optische Strahlung wird um einen Winkel  $\beta$  abgelenkt und bei Beobachtung in einer Distanz  $d_1$  um die Distanz  $d_2$  verschoben.

$d_2 = 130 \mu\text{m}$  erwartet. Zu beachten ist hierbei, dass dies eine Abschätzung nach oben darstellt, das heißt im Allgemeinen werden die Auslenkungen aufgrund der geringeren Brechungsindexgradienten darunter liegen.

Der Unterschied im Brechungsindex führt neben der Ablenkung und Verschiebung zu einer Änderung der Phasengeschwindigkeit der EM-Welle (vgl. Gleichung 3.4). Vernachlässigt man die Beugung der Strahlung, so erhält man aufgrund der Änderung der Phasengeschwindigkeit eine Differenz in der optischen Weglänge der Teilwellen. Diese Differenz wird als Gangunterschied bezeichnet und berechnet sich gemäß (Kreis, 2005)

$$\Delta s = \int_C (n_{\text{gas}}(x,y) - n_{\infty}) ds, \quad (3.15)$$

also dem Integral der Brechungsindexdifferenz entlang des Pfads der optischen Strahlung durch das Gasgemisch. Für das vereinfachte Modell aus dem vorherigem Abschnitt ergibt sich ein Gangunterschied von etwa 130 nm zwischen der Teilwelle an der Fluidoberfläche und der Teilwelle in einer Höhe von 0,1 mm. Die durch das Gasgemisch hervorgerufenen Gangunterschiede können für das menschliche Auge sichtbar und für handelsübliche Kameras messbar gemacht werden, indem die optische Strahlung nach dem Durchlaufen des Gasgemischs mit einer kohärenten Referenzwelle der gleichen Strahlungsquelle überlagert wird. Gegenüber einer solchen Referenzwelle ergibt sich für die Teilwelle an der Fluidoberfläche ein Gangunterschied von etwa 1,7  $\mu\text{m}$ . Dieser Gangunterschied erzeugt einen Phasenunterschied der überlagerten Wellen und dadurch eine lokale Änderung der Strahlungsintensität. Nähere Informationen zu der Funktionsweise interferometrischer Messprinzipien können dem Kapitel 3.2.1 entnommen werden.

Verglichen mit den Schatten- und Schlierenverfahren weisen die interferometrischen Verfahren eine höhere Genauigkeit auf und liefern mehr Informationen über die untersuchten Objekte (Hauf und Grigull, 1970). Interferometrische Verfahren werden daher trotz ihrer höheren Komplexität und höherer Kosten häufiger in quantitativen Messungen eingesetzt (ebd.). Howes (1985) kommt in der Evaluation seiner Weiterentwicklung der konventionellen Schlieren-Methode, der sogenannten *Rainbow*-Schlieren-Methode, zu der Schlussfolgerung, dass diese eine vergleichbare Genauigkeit zu einem Mach-Zehnder-Interferometer erreicht, insbesondere wenn beim Interferometer Beugungseffekte berücksichtigt werden. In dem vorliegenden Messvorhaben und der geplanten Messfläche von etwa 12 mm x 12 mm über

Tabelle 3.1: Molrefraktionen  $P$  ausgewählter chemischer Stoffe (Gardiner, Hidaka und Tanzawa, 1981)

Chemischer Stoff	Molrefraktion/( $\text{cm}^3$ ) bei 532 nm
Stickstoff ( $\text{N}_2$ )	4,484
Sauerstoff ( $\text{O}_2$ )	4,065
Argon (Ar)	4,222
Kohlenstoffdioxid ( $\text{CO}_2$ )	6,690
Wasser ( $\text{H}_2\text{O}$ )	3,782
Aceton ( $\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$ )	16,394
Ethanol ( $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$ )	13,291

dem Flüssigkeitsfilm werden die Änderungen im Brechungsindex voraussichtlich größer sein als die Änderungen im Gradienten des Brechungsindex. Daher wird bei interferometrischen Verfahren gegenüber den Schlierenverfahren ein größeres Messsignal erwartet. Aus diesem sowie den zuvor genannten Gründen wird in der vorliegenden Arbeit ein interferometrisches Messverfahren genutzt.

### 3.1.3 Digitale holografische Interferometrie

Messtechnische Verfahren, die die von einem Objekt gebeugte Wellenfronten aufzeichnen, werden unter dem Begriff Holografie zusammengefasst (Tahara et al., 2018). Dabei werden im Allgemeinen sowohl die Amplitude als auch die Phaseninformation unter Ausnutzung der Interferenz von Licht aufgezeichnet (ebd.). Es gibt eine Vielzahl unterschiedlicher holografischer Messmethoden, die beispielsweise in der Messung von Oberflächendeformationen opaker Objekte, in Strömungsvisualisierungen in der Hydrodynamik, in der Wärmeübertragung oder zur Bestimmung von räumlichen oder zeitlichen Konzentrationsverteilungen genutzt werden (Kreis, 2005). Eine umfangreiche Darstellung und Diskussion der verschiedenen Verfahren kann Kreis (ebd.) entnommen werden. Abbildung 3.2 zeigt eine mögliche Versuchsanordnung in der sogenannten *Off-Axis*-Konfiguration. Hierbei wird die optische Strahlung eines Lasers mittels eines Strahlteilers in die Referenzwelle und Beleuchtungswelle aufgeteilt. Letztere trifft auf das zu untersuchende Objekt. Die nachfolgende Wellenfront, die so genannte Objektwelle, enthält folglich die Phaseninformationen des Objekts und erzeugt bei Überlagerung mit der Referenzwelle ein Hologramm. Bei der Doppelbelichtungsmethode der holografischen Interferometrie werden zwei Hologramme, die von demselben Objekt erzeugt werden, nacheinander auf derselben Fotoplatte aufgezeichnet (ebd.). Im vorliegenden Fall wird ein Hologramm des zu untersuchenden Objekts mit dem Brechungsindex  $n_1(x,y,z)$  und eins mit dem leicht veränderten Brechungsindex  $n_2(x,y,z)$  aufgezeichnet. Die Veränderung des Brechungsindex könnte dabei durch minimale Verformungen des Objekts, durch thermische Effekte oder durch Konzentrationsänderungen des untersuchten Objekts hervorgerufen werden. Wird nun die Fotoplatte

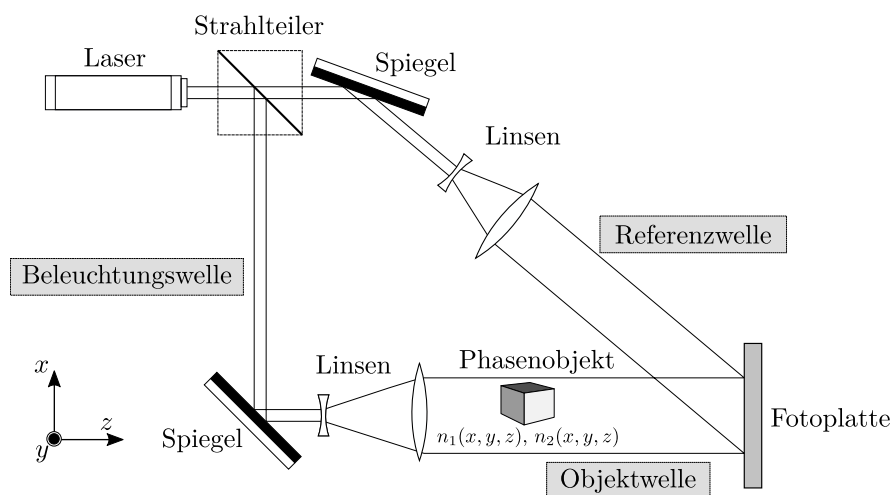


Abbildung 3.2: Schema eines optischen Aufbaus zur Aufzeichnung eines *Off-Axis*-Hologramms eines Phasenobjekts nach Kreis (2005).

entwickelt und mit der Referenzwelle beleuchtet, so werden die Wellenfronten der ersten und zweiten Objektwelle rekonstruiert und erzeugen ein Interferenzmuster. Aus dem Intensitätsverlauf dieses Interferenzmusters lässt sich der Phasenunterschied  $\Delta\varphi$  der beiden Objektwellen ermitteln. Unter Ausnutzung geeigneter Systemsymmetrien beziehungsweise mittels mehrerer Messungen aus gegebenenfalls unterschiedlichen Richtungen lässt sich hieraus die dreidimensionale Verteilung des Brechungsindex bestimmen. Im Unterschied zur klassischen Doppelbelichtungsmethode der holografischen Interferometrie werden bei der digitalen holografischen Interferometrie die einzelnen Hologramme digital mittels eines *Charge-Coupled Device* (CCD)-Sensors oder *Complementary Metal-Oxide-Semiconductor* (CMOS)-Sensors aufgezeichnet. Hierdurch können Interferenzmuster direkt weiterverarbeitet und die zu vergleichenden Wellenfronten sowie die Objektzustände später in der Auswertung kombiniert werden. Hierdurch ergibt sich eine größere Flexibilität und ein geringerer Versuchsaufwand.

Die digitale holografische Interferometrie wurde bereits für zeitlich und räumlich hochauflösende Untersuchungen von Temperatur- und Konzentrationsverteilungen eingesetzt. So untersuchten beispielsweise Kumar, Kumar und Shakher (2014) die Wärmeübertragung und die natürliche Konvektion entlang der Oberfläche elektrisch beheizter Drähte. Dehaeck, Rednikov und Colinet (2014) ermittelten die Lösungsmitteldampfverteilung entlang flüssiger, hängender Tropfen und Shukla und Panigarhi (2020) quantifizierten die Dampfwolke über flüssigem Kohlenwasserstoff. Die digitale holografische Interferometrie wird in der vorliegenden Arbeit genutzt, um die Lösungsmitteldampfverteilung über gedruckten, dünnen Fluidfilmen zu bestimmen. Die Rekonstruktion der optischen Wellenfront beziehungsweise die Berechnung des Phasenunterschieds sowie der Konzentrationsverteilung werden in Kapitel 4.2 erläutert. Der verwendete Versuchsaufbau, eine Abwandlung der in Abbildung 3.2 dargestellten *Off-Axis*-Konfiguration, wird im nachfolgenden Kapitel beschrieben.

## 3.2 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der in dieser Arbeit eingesetzte experimentelle Aufbau beschrieben. Das Ziel des Versuchsaufbaus bestand darin, dünne Fluidfilme möglichst flexibel und reproduzierbar herzustellen und die Lösungsmitteldampfverteilung über verdunstenden Fluidfilmen bei unterschiedlichen Substratneigungen untersuchen zu können. Um die Vergleichbarkeit der Messungen zu erhöhen, wurden manuelle Teilschritte in dem Messablauf vermieden. Der experimentelle Aufbau besteht aus einem Laser-Michelson-Interferometer, einer digitalen Inkjet-Druckeinheit sowie eines Sechs-Achs-Roboters, in dessen Roboterzelle die ersten beiden Komponenten platziert wurden. Der Roboter übernimmt dabei den Transport des Substrats, das heißt, er führt die Druckbewegungen des Substrats während des Drucks aus und bewegt anschließend den Fluidfilm und das Substrat in die gewünschte Messposition im Interferometer.

Nachfolgend werden die einzelnen Komponenten des experimentellen Aufbaus beschrieben. Zunächst wird das Laser-Michelson-Interferometer beschrieben, das eine Abwandlung der in Kapitel 3.1.3 präsentierten *Off-Axis*-Holografie darstellt. Darauf folgt die Beschreibung der Inkjet-Druckeinheit, beziehungsweise die Vorstellung des Tintenversorgungskonzepts des Druckkopfs sowie dessen elektronische und räumliche Anbindung an die Roboterzelle.

Zuletzt werden die Positionen der einzelnen Komponenten zueinander in der Roboterzelle gezeigt und der Ablauf einer Einzelmessung dargelegt. Teile des hier präsentierten Aufbaus, insbesondere die Konzeption und Umsetzung der Inkjet-Druckeinheit, wurden von Markus Lotz in der vom Autor betreuten Masterarbeit umgesetzt (Lotz, 2020). Die in diesem Kapitel präsentierten *Computer-Aided Design* (CAD)-Zeichnungen wurden unter anderem mit 3D-Modellen, die von den jeweiligen Herstellern zur Verfügung gestellt wurden, erstellt.

### 3.2.1 Laser-Michelson-Interferometer

Das Michelson-Interferometer wurde bereits 1887 im Michelson-Morley-Experiment genutzt, um den postulierten Ätherwind zu untersuchen (Michelson und Morley, 1887). Seitdem wurde der Aufbau vielfach für unterschiedliche Anwendungszwecke eingesetzt. Heutzutage nutzt man abgewandelte Michelson-Interferometer beispielsweise für den Nachweis von Gravitationswellen (Nardecchia, 2022). Ein Hauptvorteil des Interferometers besteht darin, dass atmosphärische Schwankungen bei gleicher Interferenzarmlänge direkt kompensiert werden (Shamsi und Stacey, 1967). Außerdem ist der Versuchsaufbau einfach und zuverlässig (ebd.).

Der schematische Strahlengang sowie eine CAD-Darstellung des Interferometers sind in Abbildung 3.3 dargestellt. Als optische Lichtquelle wird ein diodengepumpter Festkörperlaser mit der Wellenlänge  $\lambda_L = 532 \text{ nm}$  der Firma Thorlabs eingesetzt (Produktbezeichnung: CPS532-C2, Thorlabs Inc., USA). Das Lasermodul hat einen kollimierten, kreisförmigen Strahl mit dem Radius  $w_e = 1,75 \text{ mm}$  und eine optische Strahlleistung  $\Phi_e = 0,9 \text{ mW}$  (Thorlabs, Inc., 2014). Der Radius des Strahls wurde hierbei gemäß der  $1/e^2$ -Definition angegeben, das heißt gemäß des Radius, bei dem die Intensität des Strahls auf  $1/e^2$  der maximalen Strahlintensität abgefallen ist. Für gaußsche Strahlen entspricht dieser Radius dem Radius des in DIN EN ISO 11146-1 (2021) festgelegten  $D4\sigma$ -Verfahrens. Für die Spannungsversorgung wird das vom Hersteller empfohlene 5 VDC Netzteil genutzt (LDS5-EC, Thorlabs Inc., USA).

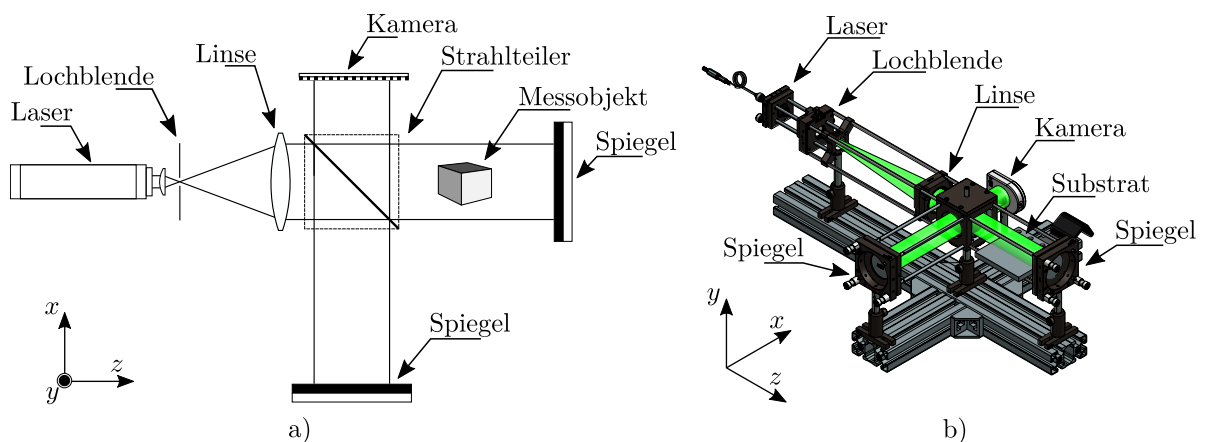


Abbildung 3.3: Die Abbildung zeigt den schematischen Aufbau des in dieser Arbeit verwendeten Michelson-Interferometers (a) sowie eine CAD-Darstellung desselben (b). Die optischen Komponenten wurden mit einem Käfigsystem ausgerichtet und auf Aluminium-Profilen montiert.

Der Laserstrahl wird unmittelbar nach Austritt aus dem Gehäuse des Lasermoduls mittels einer plankonvexen, asphärischen Linse fokussiert (AL1225M-A, Thorlabs Inc., USA). In der Nähe des Brennpunkts der Linse ( $f_{\text{fok}} = 25 \text{ mm}$ ) wird die Taille des Laserstrahl auf einen minimalen Radius  $w_0$  fokussiert (Pinnell, Klug und Forbes, 2020)

$$w_0 = \frac{\lambda_L f_{\text{fok}}}{\pi w_e}. \quad (3.16)$$

In der Nähe des Brennpunkts der Linse ist das Wellenfeld proportional zu der Fourier-Transformation der in die Linse einfallenden elektromagnetischen Welle. Dieser Sachverhalt wird genutzt, um mithilfe sogenannter Raumfilter ungewünschte Strahlhomogenitäten herauszufiltern. Hierfür wird eine Lochblende geeigneter Größe in der Brennebene der Linse positioniert. Ein üblicher, heuristischer Wert für einen geeigneten Durchmesser der Lochblende beträgt etwa das 1.5-fache des Strahldurchmessers an der Strahltaile (ebd.). Für den vorliegenden Aufbau ergibt sich daraus eine ideale Größe von etwa  $7,3 \mu\text{m}$ . Im Datenblatt der Lochblenden wird für den vorliegenden Fall ein etwas größerer Durchmesser von etwa  $9,9 \mu\text{m}$  empfohlen (Thorlabs, Inc., 2021). Aufgrund dieser Sachlage wird eine Lochblende mit einem Durchmesser von  $(10 \pm 1) \mu\text{m}$  (P10C, Thorlabs Inc., Thorlabs) gewählt und mit einer lateral verstellbaren Optikhalterung mit Feingewinde (ST1XY-A/M, Thorlabs Inc., USA) positioniert.

Nach der Lochblende wird der Laserstrahl mit einer bikonvexen Linse mit der Brennweite  $f_{\text{koll}} = 300 \text{ mm}$  erneut kollimiert (LB1917-A, Thorlabs Inc., USA). Bei dem Teilaufbau der beschriebenen fokussierenden und der darauf folgenden kollimierenden Linse handelt es sich um einen Keplerschen Laserstrahlaufweiter. Dessen Vergrößerungsverhältnis wird gegeben durch

$$V_{\text{Kepl}} = \frac{f_{\text{koll}}}{f_{\text{fok}}} = 12. \quad (3.17)$$

Dies bedeutet, dass der Laserstrahl von  $w_e = 1,75 \text{ mm}$  auf etwa  $w'_e = 21 \text{ mm}$  aufgeweitet wird. Dies ermöglicht ein potenziell größeres Messfenster beziehungsweise eine homogenere Ausleuchtung desselben.

Der aufgeweitete Strahl trifft orthogonal auf einen Strahlteilerwürfel (BS031, Thorlabs Inc., USA), der den Strahl in zwei Teilstrahlen ähnlicher Intensität teilt. Diese Teilstrahlen werden in den Messarm und den Referenzarm des Interferometers gelenkt. Die beiden Arme des Interferometers sind gleich lang und reflektieren den Strahl mittels eines Silber-Oberflächenspiegels (PF20-03-P01, Thorlabs Inc., USA), der am Ende des jeweiligen Arms positioniert ist, zurück in Richtung des Strahlteilerwürfels. Die Spiegel werden mit der Hilfe von hochpräzisen, kinematischen Spiegelhaltern ausgerichtet (KC2/M, Thorlabs Inc., USA). Nach Durchlaufen der Interferenzarme werden die Teilstrahlen vom Strahlteiler rekombiniert und in Richtung der Kamera gelenkt. Es gilt zu beachten, dass konstruktionsbedingt die Hälfte der Intensität des rekombinierten Strahls zurück in Richtung des Strahlaufweiters reflektiert wird. Dieser Strahl wird hauptsächlich von der Halterung der Lochblende absorbiert. Etwaige Rückreflexionen in den Strahlengang sind Störungen höherer Ordnung und werden aufgrund ihrer geringen Intensität vernachlässigt.

Durch die Positionierung eines Messobjekts im Messarm unterscheiden sich die optischen Weglängen der beiden Interferenzarme. Aufgrund dieses Gangunterschieds kommt es zu einer relativen Phasenverschiebung zwischen den beiden Teilstrahlen und somit zu

Tabelle 3.2: Technische Spezifikation der Strahldiagnosekamera Beamage-4M der Firma Gentec Electro-Optics (Gentec Electro-Optics, Inc., 2021); \*Bei maximaler Bit-Tiefe und voller Auflösung wurden von den Herstellerangaben abweichende Werte für die maximale Bildaufnahmerate und den Pufferspeicher festgestellt. Die festgestellten Werte sind in eckigen Klammern angegeben.

Spezifikation	Bezeichnung/Wert
Sensortechnologie	CMOS ohne Deckglas
Bit-Tiefe	12 Bit, monochrom
Pixelanzahl (horizontal $\times$ vertikal)	4,2 Megapixel (2048 $\times$ 2048)
Wellenlängenbereich	350 nm bis 1150 nm
Sensorgroße	11,3 mm $\times$ 11,3 mm
Pixelgröße	5,5 $\mu\text{m}$ $\times$ 5,5 $\mu\text{m}$
Mögliche Belichtungszeit	0,06 ms bis 200 ms
Maximale Bildaufnahmerate	6,2 s <sup>-1</sup> [3,1 s <sup>-1</sup> ]*
Pufferspeicher	128 Bilder [64 Bilder]*

einer ortsabhängigen Änderung der Strahlungsintensität des rekombinierten Strahls, der sogenannten Interferenz der Teilstrahlen. Der Phasenunterschied zwischen den beiden Teilstrahlen  $\Delta\varphi$  lässt sich gemäß  $\Delta\varphi = 2\pi\Delta s/\lambda_L$  aus dem Gangunterschied  $\Delta s$  berechnen. Die Intensitätsverteilung des rekombinierten Strahls auf dem Detektor  $I_D$  ist proportional zu dem Betragsquadrat der Amplitude der überlagerten EM-Welle. Vereinfacht lässt sich mithilfe der Amplitudenverteilung der EM-Welle des Messarms  $a_0(x,y)$  und der Amplitudenverteilung der EM-Welle des Referenzarms  $a_1(x,y)$  schreiben (Kemao, 2013)

$$I_D = a_0^2(x,y) + a_1^2(x,y) + 2a_0(x,y)a_1(x,y)\cos(\Delta\varphi). \quad (3.18)$$

Bei dem vorliegenden Versuchsaufbau sind die Amplitudenverteilungen der EM-Wellen in etwa identisch und deren Quadrate entsprechen etwa einem Viertel der mittleren in das Interferometer einfallenden Intensität  $I_0$ . Die auf den Detektor einfallende Intensität variiert demnach je nach Phasenverschiebung in etwa zwischen der mittleren einfallenden Intensität  $I_0$  und null.

Die Interferenzmuster des Interferometers werden digitalisiert, um deren quantitative Auswertung zu ermöglichen. Die digitale Bildaufnahme eines Interferenzmusters wird im Folgenden Interferogramm genannt. Für eine störungsfreie optische Abbildung wird der rekombinierte Laserstrahl ohne weitere abbildende, optische Elemente direkt auf einen CMOS-Sensor gerichtet. Um den Sensor vor Beschädigungen und Umwelteinflüssen zu schützen, wird in den meisten Fällen bereits direkt vom Hersteller ein Deckglas fest mit dem Sensor verklebt (Tian et al., 2017). Dies kann jedoch zu unerwünschten Reflexionen und Interferenzen führen, die eine zuverlässige Erfassung des Messsignals erschweren (Schiefer, 2004; EURECA Messtechnik GmbH, 2019). Deshalb wird in der vorliegenden Arbeit die Laserstrahldiagnosekamera Beamage-4M der Firma Gentec Electro-Optics verwendet, deren Sensor serienmäßig ohne Deckglas geliefert wird. Tabelle 3.2 zeigt die weiteren Herstellerspezifikationen der Kamera. Um die Zerstörschwelle des Kamerasensors nicht zu überschreiten, wird auf das Filtergewinde der Kamera ein 0.5 *Neutral-Density*-Filter (ND0.5, Gentec-EO Inc., CAN) geschraubt, der die optische Strahlung um etwa 70% abschwächt.

Der gesamte optische Aufbau wird in ein optisches Käfigsystem, das den Aufbau und die Ausrichtung der optischen Komponenten vereinfacht, integriert. Das Käfigsystem sowie die individuellen Optikhalterungen werden zudem auf Aluminium-Profilen montiert, um die Stabilität und die Steifigkeit des Aufbaus zu verbessern. Das Michelson-Interferometer wird für eine gute Erreichbarkeit durch den Roboter sowie eine schwingungsarme Befestigung auf dem Boden der Roboterzelle positioniert (vgl. Kapitel 3.2.3).

### 3.2.2 Inkjet-Druckeinheit

Für eine flexible und gleichzeitig reproduzierbare Herstellung dünner Fluidfilme wird eine digitale Druckeinheit in die Roboterzelle integriert. Hierfür wird der industrielle *Drop-on-Demand* Piezo-Druckkopf Xaar 1003 GS6 eingesetzt (Xaar 1003 GS6, Xaar plc, GBR). Der Druckkopf besitzt 1000 aktive Düsen bei einer Düsendichte von 360 Düsen pro Zoll beziehungsweise etwa 142 Düsen pro Zentimeter. Das Tropfenvolumen kann in acht Graustufen zwischen 6 pl und 42 pl variiert werden.

Der Druckkopf ist für den Betrieb mit einem zirkulierendes Fluidversorgungssystem vorgesehen. Das bedeutet, dass während des Druckvorgangs ein bestimmter Volumenstrom des Druckfluids an der Rückseite der Düsen vorbeigeführt wird. Es wird ein zirkulierender Volumenstrom von  $50 \text{ ml min}^{-1}$  angestrebt, wobei der Hersteller für den zirkulierenden Volumenstrom den dreifachen bis zehnfachen Wert des gedruckten Volumenstroms empfiehlt. Um diesen zirkulierenden Volumenstrom zu erzeugen, wird je nach hydraulischer Impedanz des Druckkopfs und Viskosität des Druckfluids ein Differenzdruck zwischen den Fluideingang und Fluidausgang des Druckkopfs angelegt. Der durchschnittliche Menis-

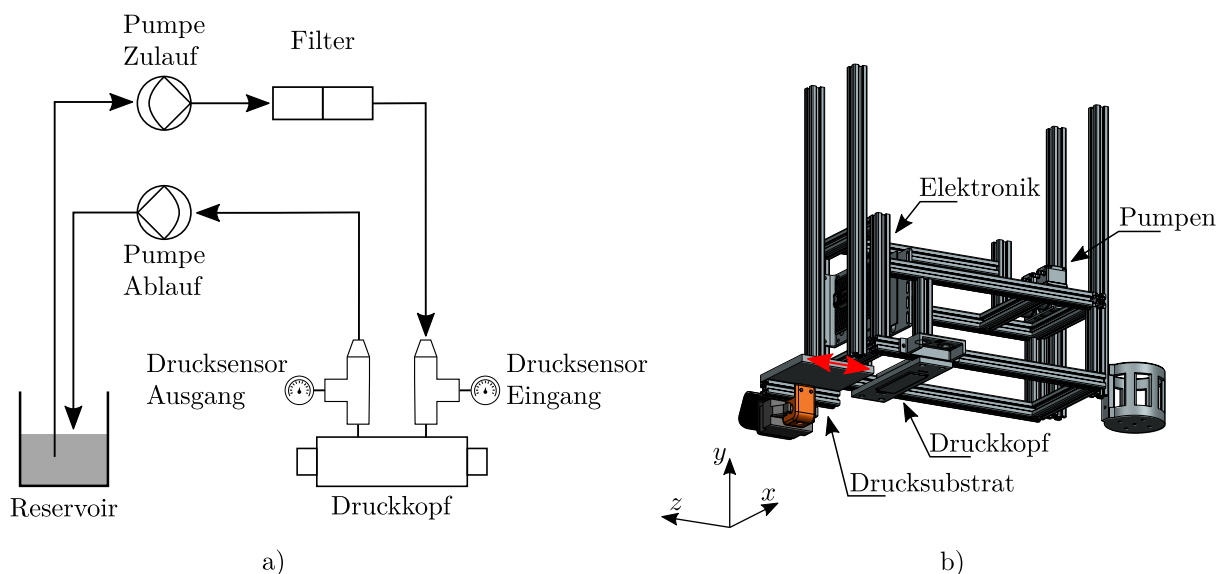


Abbildung 3.4: Die Abbildung links (a) zeigt ein ein Schema des umgesetzten Fluidversorgungssystems des Inkjet-Druckkopfs nach Lotz (2020). Der rote Pfeil in der CAD-Darstellung der Inkjet-Druckeinheit (b) repräsentiert die lineare Bewegung des Substrats während des Druckvorgangs. Das Fluidreservoir sowie die Verbindungsschläuche der Komponenten sind nicht abgebildet.



kusdruck, das heißt der Druck, der an der Düsenöffnung anliegt, sollte gemäß Hersteller bei ungefähr  $-10$  hPa bis  $-20$  hPa liegen. Der Viskositätsbereich für das Druckfluid liegt für den Druckkopf gemäß dem Datenblatt des Herstellers zwischen  $7$  mPa s und  $25$  mPa s. (Xaar plc, 2016)

Ein Hauptvorteil eines zirkulierenden Fluidversorgungssystems besteht darin, dass das Ansaugen kleiner Luftmengen durch die Düse nicht zu einer Ansammlung von Luftblasen in der Düsenkammer führt, da diese aufgrund des konstanten Volumenstroms abtransportiert werden. Eine Ansammlung von Luftblasen in den Düsenkammern führt potenziell zu einer Veränderung des Tropfenausstoßverhaltens des Druckkopfs und sollte deshalb vermieden werden. Außerdem kommt es aufgrund der Fluidzirkulation zu einem Wirbel am Düseneingang, sodass das Fluid in der Düsenkammer ständig nachgefüllt wird, unabhängig davon, ob die Düse in dem Moment druckt oder nicht. Dies resultiert in einer höheren Zuverlässigkeit des Tropfenausstoßverhaltens, insbesondere nach einer kurzen Inaktivität des Druckkopfs. (Zapka, 2017)

Ein Schema des in der Arbeit umgesetzten, zirkulierenden Fluidversorgungssystems ist in Abbildung 3.4 a) dargestellt. Das Druckfluid wird mithilfe einer Membranpumpe (kunden-spezifische Projektpumpe: PML 11458-NF 60 mit BLDC, KNF Neuberger GmbH, DEU) aus dem offenen Fluidreservoir gepumpt und durch einen Partikelfilter (SCF-3112-J100, Pall Corporation, USA) geleitet, um das Verstopfen der Düsen aufgrund von partikulären Verunreinigungen des Fluids zu vermeiden. Am Fluideingang und am Fluidausgang des Druckkopfs befinden sich zwei Drucksensoren (SSI Series, First Sensor AG, DEU), die genutzt werden, um den Differenzdruck sowie den durchschnittlichen Meniskusdruck im Druckkopf zu bestimmen. Nach dem Durchlaufen des Druckkopfs wird das Druckfluid von einer zweiten Membranpumpe gleicher Bauart zurück in das Fluidreservoir gepumpt. Die Auslesung der Sensoren sowie die Ansteuerung der Membranpumpen erfolgt mittels eines Teensy-Mikrocontrollers (Teensy 3.6, PJRC, USA).

Eine CAD-Darstellung der Inkjet-Druckeinheit ist in Abbildung 3.4 b) zu sehen. Die in der Roboterzelle aufgehängte Druckeinheit (vgl. Kapitel 3.2.3) besteht aus einem Grundgerüst aus  $20$  mm x  $20$  mm Aluminiumprofilen und enthält das oben beschriebene Fluidversorgungssystem, den Druckkopf sowie elektronische Komponenten. Letztere umfassen den Teensy für die Steuerung der Pumpen sowie eine bestückte Leiterplatte der elektronischen Druckkopfansteuerung, das sogenannte *Head-Interface Board* der Firma Global Inkjet Systems Ltd. (GIS). Das druckkopfspezifische *Head-Interface Board* (HIB-XR-1002/3, GIS, GBR) wird von einem generellen *Print-Managing Board* (PMB-C2, GIS, GBR) angesteuert, das außerhalb von der Inkjet-Druckeinheit im Schaltschrank des Roboters installiert wurde. Im Schaltschrank des Roboters wurden außerdem die Netzteile zur Spannungsversorgung der Inkjet-Druckeinheit untergebracht.

Die Auswahl der Druckvorlage, die Wahl der Anzahl der Druckvorgänge sowie weitere Einstellungen wie beispielsweise Druckgeschwindigkeit und Druckauflösung werden auf einem Computer mittels der proprietären ATLAS-Software beziehungsweise dem Print-Server der Firma GIS vorgenommen. Der Computer ist dabei über eine Universal Serial Bus Schnittstelle mit dem *Print-Managing Board* verbunden. Nähere Informationen zu dem verwendeten Drucksystem können der Masterarbeit von Markus Lotz (Lotz, 2020) sowie der Bedienungsanleitung des Druckkopfs entnommen werden (Xaar plc, 2016).

### 3.2.3 Roboterplattform

Die Inkjet-Druckeinheit sowie das Michelson-Interferometer werden für einen automatisierten Versuchsablauf in die Roboterzelle eines 6-Achs-Knickarmroboters (KR 3 R540, Kuka AG, DEU) integriert. Bei der Roboterplattform handelt es sich um ein standardisiertes und vorkonfiguriertes Zellenkonzept des Herstellers (ready2\_educate\_advanced, Kuka AG, DEU) mit einem Außenmaß von 1200 mm × 1860 mm × 880 mm. Der untere Teil der Plattform enthält die Kompaktsteuerung des Roboters (KRC4 compact, Kuka AG, DEU) und die Spannungsversorgungen der Komponenten. Im oberen Teil der Plattform ist der Roboter zentral in der sogenannten Roboterzelle mit den Außenmaßen 1200 mm x 850 mm x 880 mm positioniert.

Die Roboterzelle ist mit Acrylglas eingehaust, bietet jedoch mittels Schiebe- und Schwenktüren von jeder Seite Zugang zu dem Roboter. Die Reichweite des Roboters deckt einen Großteil des Volumens der Roboterzelle ab, wobei insbesondere Positionen in mittlerer Entfernung vom Zentrum flexibel durch unterschiedliche Roboterposen erreicht werden können. Aufgrund dieser erhöhten Flexibilität werden in diesen Bereichen die Inkjet-Druckeinheit sowie das Michelson-Interferometer positioniert. Eine CAD-Darstellung der Roboterplattform ist in Abbildung 3.5 a) dargestellt. Die Inkjet-Druckeinheit ist auf der einen Seite der Roboterzelle aufgehängt und das Michelson-Interferometer ist auf der gegenüberliegenden Seite an dem Bohrraster der Bodenplatte der Roboterzelle befestigt. Diese Anordnung erlaubt eine zuverlässige Erreichbarkeit der Komponenten bei gleichzeitiger Vermeidung von Verunreinigungen des Interferometers oder Beeinflussung der Messungen durch die

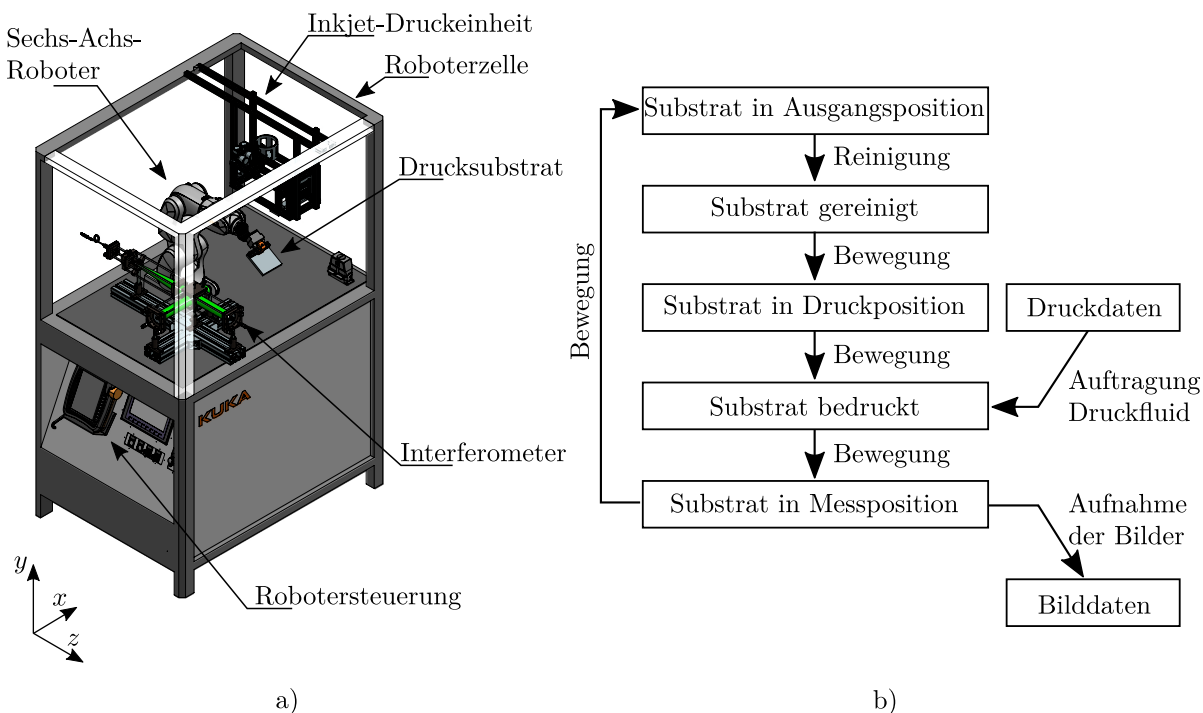


Abbildung 3.5: Die Abbildung zeigt eine CAD-Darstellung der Roboterplattform (a) mit dem integrierten Michelson-Interferometer sowie der Inkjet-Druckeinheit. Außerdem ist das Ablaufschema eines für diese Arbeit charakteristischen Versuchsablaufs (b) dargestellt.

Druckeinheit.

Anhand des Ablaufschemas in Abbildung 3.5 b) wird ein für die vorliegende Arbeit typischer Versuchsablauf exemplarisch beschrieben. Zunächst wird das Drucksubstrat mit dem pneumatischen Greifer des Roboters aufgenommen und in die Ausgangsposition gebracht. Das Substrat wird daraufhin manuell mit Reinraumtüchern und Aceton gereinigt. Nachdem das Aceton vollständig verdunstet ist, wird der Druckvorgang gestartet. Hierfür wird das Substrat vom Roboter unter die Druckeinheit in die Druckposition gebracht und von dort parallel zur Düsenplatte des Druckkopfs am Druckkopf linear mit einer Geschwindigkeit von  $40 \text{ mm s}^{-1}$  vorbeigeführt. Der Abstand zwischen der Unterseite des Druckkopfs und der Oberfläche des Substrats beträgt etwa  $0,9 \text{ mm}$  und die Düsenreihen des Druckkopfs verlaufen senkrecht zu der Bewegungsrichtung des Substrats. Sobald sich der zu bedruckende Bereich des Drucksubstrats unter dem Druckkopf befindet, sendet die Robotersteuerung einen *Print-Go* Befehl an das *Print-Managing Board*. Dieses sendet die Druckdaten an das *Head-Interface Board*, welches wiederum die einzelnen Düsen ansteuert, die das Druckfluid strukturiert auf dem Substrat aufbringen. Nachdem das gesamte Substrat an dem Druckkopf vorbeigeführt wurde, wird das Substrat linear in die Druckposition zurückgeführt und ein sogenannter Druckzyklus abgeschlossen. Dieser Druckzyklus wird nun bei Bedarf wiederholt, wobei ein typischer Druckvorgang in dieser Arbeit aus 20 Druckzyklen besteht. Die Druckbewegung des Substrats wird durch den roten Pfeil in Abbildung 3.4 b) veranschaulicht. Das bedruckte Substrat wird anschließend in die Messposition im Interferometer bewegt. Einerseits wird versucht, die Zeit zwischen dem Ende des Druckvorgangs und dem Start der Messung gering zu halten, andererseits werden bei der Roboterbewegung schnelle Bewegungsänderungen vermieden. Insbesondere beim seitlichen Einführen des bedruckten Substrats in den Strahlengang des Interferometers wird die Geschwindigkeit reduziert, um erzwungene Konvektion der Luft zu minimieren. Sobald das bedruckte Substrat die Messposition erreicht hat, sendet die Robotersteuerung einen elektrischen Impuls an eine angeschlossene Mikrocontroller-Platine (Arduino UNO, Arduino S.r.l., ITA) und diese löst über mehrere Rechtecksignale die einzelnen Bildaufnahmen der angeschlossenen Kamera aus. Bei voller Auflösung können maximal 64 Bildaufnahmen gespeichert werden, weshalb im Rahmen dieser Arbeit je Versuch 60 Bildaufnahmen bei einer Bildwiederholrate von  $2,5 \text{ s}^{-1}$  aufgenommen werden. Nach der Bildaufnahme des letzten Bildes wird das Drucksubstrat in die Ausgangsposition bewegt, gereinigt und gegebenenfalls ein weiterer Versuchsablauf gestartet.

Bei der Konzeption des Versuchsablaufs wurde darauf geachtet, dass die Versuche mit einer hohen Reproduzierbarkeit durchgeführt werden können. Durch die Automatisierung des Ablaufs und der Schnittstelle zwischen Roboter und Kamera wird die Lösungsmittelatmosphäre über dem gedruckten Fluidfilm nicht unmittelbar, jedoch immer zum gleichen Zeitpunkt nach dem Druckvorgang untersucht. Die Einhausung der Roboterzelle minimiert zudem externe Luftströmungen, die die Lösungsmittelatmosphäre beeinflussen könnten.

### 3.3 Charakterisierung des Kamerasensors

Da die Kamera des Interferometers einen essenziellen Bestandteil des Versuchsaufbaus darstellt, wird diese im Folgenden hinsichtlich ihrer Sensitivität, ihrer Linearität sowie

ihres Rauschens charakterisiert. Das Charakterisierungsverfahren orientiert sich dabei an dem von der European Machine Vision Association (EMVA) veröffentlichten Standard EMVA 1288. Die Abbildung 3.6 zeigt das zugrunde liegende Modell der Signalverarbeitung eines Pixels. Die mittlere Photonenzahl  $\gamma_p$ , die auf die Pixelfläche auftrifft, erzeugt eine Elektronenzahl  $\gamma_e$  im Pixel. Das Verhältnis der induzierten Elektronen zur Anzahl der auftreffenden Photonen wird durch die Quanteneffizienz  $\eta_{qe}$  beschrieben, die im Allgemeinen wellenlängenabhängig ist (European Machine Vision Association, 2021)

$$\eta_{qe}(\lambda) = \frac{\gamma_e}{\gamma_p}. \quad (3.19)$$

Die durch Photonen hervorgerufene Ladung  $\gamma_e$  wird von einer Dunkelladung  $\gamma_d$  überlagert, die der induzierten Ladung im Pixel bei einem abgedunkelten Sensor entspricht. Die gesamte Ladung wird nachfolgend von der internen Elektronik mit der Systemverstärkung  $K$  linear verstärkt, quantisiert und in ein Graustufensignal  $\gamma$  gewandelt (ebd.)

$$\gamma = K(\gamma_d + \gamma_e). \quad (3.20)$$

Die Dunkelladung  $\gamma_d$  erzeugt einen Graustufenwert  $\gamma_{\text{dunkel}}$  und die photoinduzierten Ladungen  $\gamma_e$  lassen sich mithilfe von Gleichung (3.19) in Abhängigkeit der mittleren auf das Pixel auftreffenden Photonenzahl ausdrücken (ebd.)

$$\gamma = \gamma_{\text{dunkel}} + K\eta_{qe}\gamma_p. \quad (3.21)$$

Für die zeitliche Varianz des Graustufensignals  $\sigma_\gamma$  ergibt sich bei einem linearen Kameramodelle eine lineare Überlagerung der spezifischen Varianzen (ebd.)

$$\sigma_\gamma^2 = K^2(\sigma_d^2 + \sigma_e^2) + \sigma_q^2. \quad (3.22)$$

Dabei werden die signalunabhängigen und normalverteilten Rauschquellen, die beispielsweise durch das Auslesen des Sensors entstehen, in dem Dunkelrauschen  $\sigma_d$  zusammengefasst. Das Schrotrauschen  $\sigma_e$  entsteht aufgrund der Quantisierung der induzierten Ladung, ist Poisson-verteilt und entspricht der Wurzel der mittleren Anzahl der induzierten Elektronen (ebd.)

$$\sigma_e = \sqrt{\gamma_e}. \quad (3.23)$$

Durch die Umwandlung der Ladung in ein digitales und quantisiertes Graustufensignal entsteht ein Quantisierungsrauschen mit der Varianz  $\sigma_q^2 = 1/12$  (Jähne, 2012). Mittels

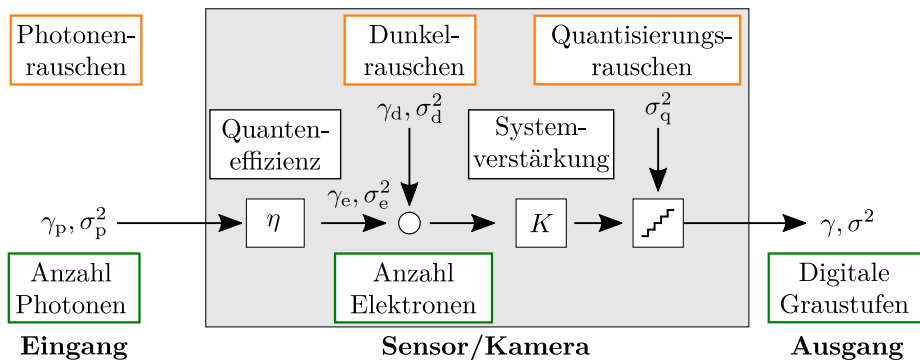


Abbildung 3.6: Lineares Kameramodelle nach EMVA 1288 (European Machine Vision Association, 2021)

Gleichung (3.19), Gleichung (3.21) und Gleichung (3.23) ergibt sich für die zeitliche Varianz des Graustufensignals  $\sigma_\gamma$  ein linearer Zusammenhang zu den photoinduzierten Graustufen (European Machine Vision Association, 2021)

$$\sigma_\gamma^2 = K^2 \sigma_d^2 + \sigma_q^2 + K (\gamma - \gamma_{\text{dunkel}}) = \sigma_{y,\text{dunkel}}^2 + K (\gamma - \gamma_{\text{dunkel}}). \quad (3.24)$$

Diese Gleichung sowie Gleichung (3.21) werden genutzt, um die Systemverstärkung  $K$ , das zeitliche Dunkelrauschen  $\sigma_d$  sowie die Quanteneffizienz  $\eta_{qe}$  des Sensors zu bestimmen. Hierfür wird ein Versuchsaufbau mit einer großflächigen Beleuchtung gewählt, die den Sensor der Kamera möglichst gleichmäßig beleuchtet (vgl. Abbildung 3.7 a). Die Beleuchtung besteht dabei aus mehreren lateral verteilten, grünen *Light-Emitting Diodes* (LEDs) und einer optischen Diffusorplatte. Die Beleuchtung erzeugt an der Position des Sensors eine Beleuchtungsstärke von  $E_v = (220 \pm 22)$  lx. Vor dem Auftreffen auf den Kamerasensor wird die Beleuchtungsstärke mittels eines 0.5 *Neutral-Density-Filters* (ND0.5, Gentec-EO Inc., CAN) um 70 % auf eine Beleuchtungsstärke von  $E_{v,ND} = (66 \pm 7)$  lx reduziert (Gentec Electro-Optics, Inc., 2020). Die Beleuchtungsstärken werden mittels eines Digitalluxmeters (Minlux, MX-Elektronik, DEU; Marx, 2002; Marx, 2004) gemessen und die angegebenen Fehler während der Messung abgeschätzt. Mittels des LED-Spektrums (vgl. Abbildung 3.7 b) und der LuxPy Toolbox für Python von Smet (2020) wird das photometrische Strahlungsäquivalent  $K_{\text{photo}} = 520 \text{ lm W}^{-1}$  bestimmt, welches ein Maß für die Äquivalenz zwischen photometrischen und radiometrischen Größen darstellt (Sperling und Kück, 2018). Hiermit kann die photometrische Beleuchtungsstärke in die radiometrische Bestrahlungsstärke  $E_e = (12,7 \pm 1,3) \mu\text{W cm}^{-2}$  umgerechnet werden.

Die Abbildung 3.7 c) zeigt einen vertikalen und horizontalen Schnitt durch eine exemplarische Bildaufnahme der Kamera. Die Schnitte verlaufen dabei jeweils durch die Bildmitte der Aufnahme. Insbesondere beim vertikalen Schnitt ist eine unerwünschte Intensitätsschwankung über die Höhe des Sensors erkennbar. Um die Homogenität der Ausleuchtung und somit die Zuverlässigkeit der Bestimmung der Kamerakennwerte zu erhöhen, empfiehlt der EMVA-Standard die Verwendung einer diffus reflektierenden Hohlkugel (Ulbricht-Kugel). Diese emittiert eine wohldefinierte Intensität homogen über die gesamte Blendenöffnung (Hain, Kähler und Tropea, 2007), steht jedoch für die vorliegende Untersuchung nicht zur Verfügung. Die einzelnen sichtbaren Ausreißer in Abbildung 3.7 c) sind mehrheitlich auf Verunreinigungen des Kamerasensors oder defekte Pixel zurückzuführen.

Bei konstanter Bestrahlungsstärke  $E_e$  wird über die Variation der Belichtungszeit  $t_{\text{exp}}$  des Sensors die mittlere Photonenzahl  $\gamma_p$ , die während der Belichtungszeit auf einen Pixel der Fläche  $A$  trifft, linear erhöht (European Machine Vision Association, 2021)

$$\gamma_p = \frac{AE_e t_{\text{exp}}}{h_p c_1} \lambda_{\text{LED}}. \quad (3.25)$$

Hierbei stellt  $\lambda_{\text{LED}} = 526 \text{ nm}$  die dominante Wellenlänge der LED-Beleuchtung,  $h_p$  das Plancksche Wirkungsquantum und  $c_1$  die Lichtgeschwindigkeit dar. Es werden für jede Belichtungszeit zwei Bildaufnahmen der Lichtquelle sowie zwei Dunkelmessungen aufgenommen. Bei einer Bildgröße von  $M$  Pixelreihen und  $N$  Pixelspalten lassen sich daraus die mittleren Graustufensignale sowie die zeitliche Varianz der Graustufensignale  $\sigma_\gamma^2$  berechnen

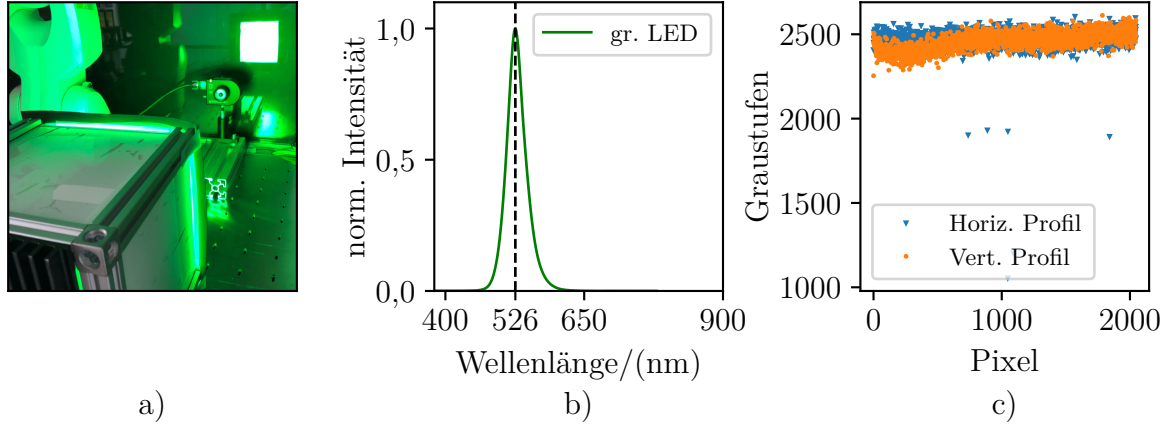


Abbildung 3.7: Die linke Abbildung (a) zeigt ein Foto des verwendeten Messaufbaus für die homogene, flächige Beleuchtung des Kamerasensors mit einer grünen LED-Beleuchtung. Das normierte Emissionsspektrum der grünen LED wird in der Mitte gezeigt (b). Die LED-Beleuchtung sowie dessen Spektrum wurde von Daume (2020) übernommen. Die rechte Abbildung (c) zeigt einen horizontalen und vertikalen Schnitt durch eine exemplarische Bildaufnahme der flächigen Beleuchtung mit der Beamage Kamera ( $t_{\text{exp}} = 80 \text{ ms}$ ).

(European Machine Vision Association, 2021)

$$\gamma = \frac{1}{2} (\gamma_0 + \gamma_1) \quad (3.26)$$

$$= \frac{1}{NM} \sum_{m=0}^{M-1} \sum_{n=0}^{N-1} (\hat{\gamma}_0(m,n) + \hat{\gamma}_1(m,n)) \quad (3.27)$$

$$\sigma_\gamma^2 = \frac{1}{2NM} \sum_{m=0}^{M-1} \sum_{n=0}^{N-1} [(\hat{\gamma}_0(m,n) - \gamma_0) - (\hat{\gamma}_1(m,n) - \gamma_1)]^2 \quad (3.28)$$

$$= \frac{1}{2NM} \sum_{m=0}^{M-1} \sum_{n=0}^{N-1} (\hat{\gamma}_0(m,n) - \hat{\gamma}_1(m,n))^2 - \frac{1}{2} (\gamma_0 - \gamma_1)^2, \quad (3.29)$$

wobei  $\gamma_0$  und  $\gamma_1$  den mittleren Grauwert der ersten und zweiten Bildaufnahme bezeichnen. Sie berechnen sich jeweils als Mittelwert der einzelnen Pixelwerte der ersten  $\hat{\gamma}_0(m,n)$  beziehungsweise zweiten Bildaufnahme  $\hat{\gamma}_1(m,n)$ . Gleichung (3.29) berechnet die Varianz der Differenz der ersten und der zweiten Bildaufnahme. Hierdurch wird die zeitlich konstante räumliche Varianz eliminiert und man erhält die zeitliche Varianz. Nähere Informationen hierzu sowie dem hier verwendeten Photonen-Transfer-Kameramodell können Jähne (2012) oder dem linearen EMVA-Standard 1288 in der Version 4.0 entnommen werden.

Wie zuvor erläutert wurde kann Gleichung (3.21) genutzt werden, um die Systemverstärkung  $K$  des Sensors zu bestimmen. Hierzu wird in Abbildung 3.8 die sogenannte Photontransferkurve dargestellt, das heißt die zeitliche Varianz des Graustufensignals wird gegen die photoinduzierten Graustufen aufgetragen. Eine lineare Regression der Messdaten ergibt über die Steigung der Geraden die Systemverstärkung  $K = 0,4322 \pm 0,0064$  und über den y-Achsenabschnitt das zeitliche Dunkelrauschen  $\sigma_d = 18,7 \pm 1,3$  beziehungsweise  $\sigma_{\text{dunkel}} = 8,11 \pm 0,53$  des Kamerasensors. Hierbei wird  $\sigma_d$  in Anzahl erzeugter Elektronen und  $\sigma_{\text{dunkel}}$  in resultierenden Graustufen angegeben. Der angegebene Fehler leitet sich aus

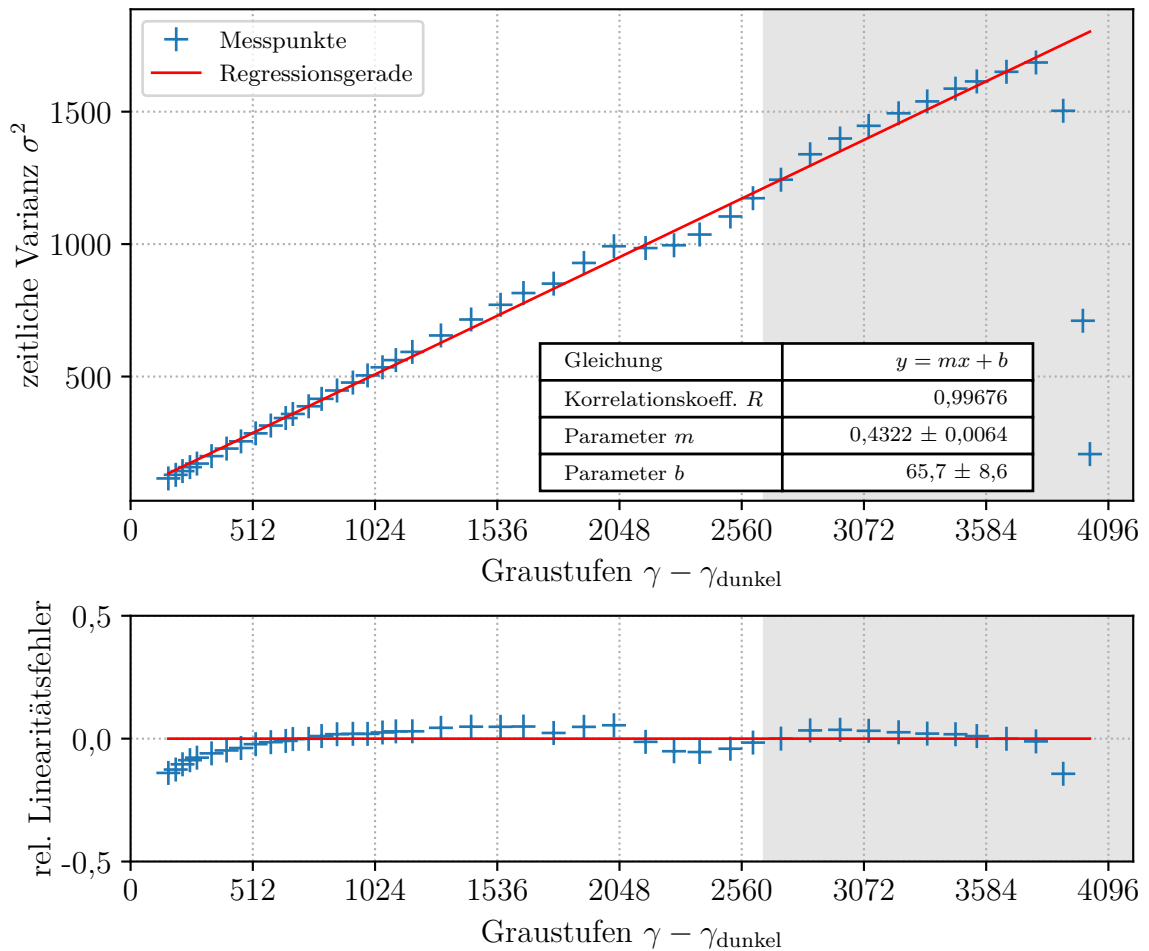


Abbildung 3.8: Der obere Graph zeigt die Photonentransferkurve, das heißt die zeitliche Varianz des Graustufensignals gegen die mittleren photoinduzierten Graustufen einer Aufnahme. Mit Hilfe einer linearen Regression wird die Systemverstärkung  $K$  sowie das Dunkelrauschen  $\sigma_{\text{dunkel}}^2$  bestimmt. Die grau hinterlegten Messwerte werden bei der Regression gemäß des EMVA-Standards 1288 nicht berücksichtigt. Der relative Linearitätsfehler der linearen Regression wird im unteren Graphen dargestellt.

den Unsicherheiten der Fitparameter der linearen Regression ab. Die lineare Regression wird gemäß des EMVA Standards 1288 auf einen Bereich zwischen 0 % bis 70 % der photoinduzierten Graustufen, die einem gesättigten Sensor entsprechen, beschränkt. Die darüber liegenden Werte, die in der Abbildung grau hinterlegt sind, weichen im Allgemeinen von dem linearen Verhalten ab. Es wird deutlich, dass der lineare Bereich des vorliegenden Sensors die 70 %-Schwelle übersteigt und ein größerer Anpassungsbereich möglich wäre.

Die ermittelte Systemverstärkung  $K$  kann zusammen mit Gleichung (3.21) genutzt werden, um mithilfe eines weiteren Diagramms die Quanteneffizienz  $\eta$  zu bestimmen. In Abbildung 3.9 werden in der sogenannten Empfindlichkeitskurve die photoinduzierten Graustufen gegen die mittlere Anzahl auf einen Pixel auftreffender Photonen aufgetragen, die mittels Gleichung (3.25) aus der Belichtungszeit des Sensors  $t_{\text{exp}}$  berechnet werden. Die an den Messwerten durchgeführte lineare Regression bestätigt einen linearen Zusammenhang der aufgetragenen Variablen. Allerdings wird bei dem relativen Linearitätsfehler deutlich,

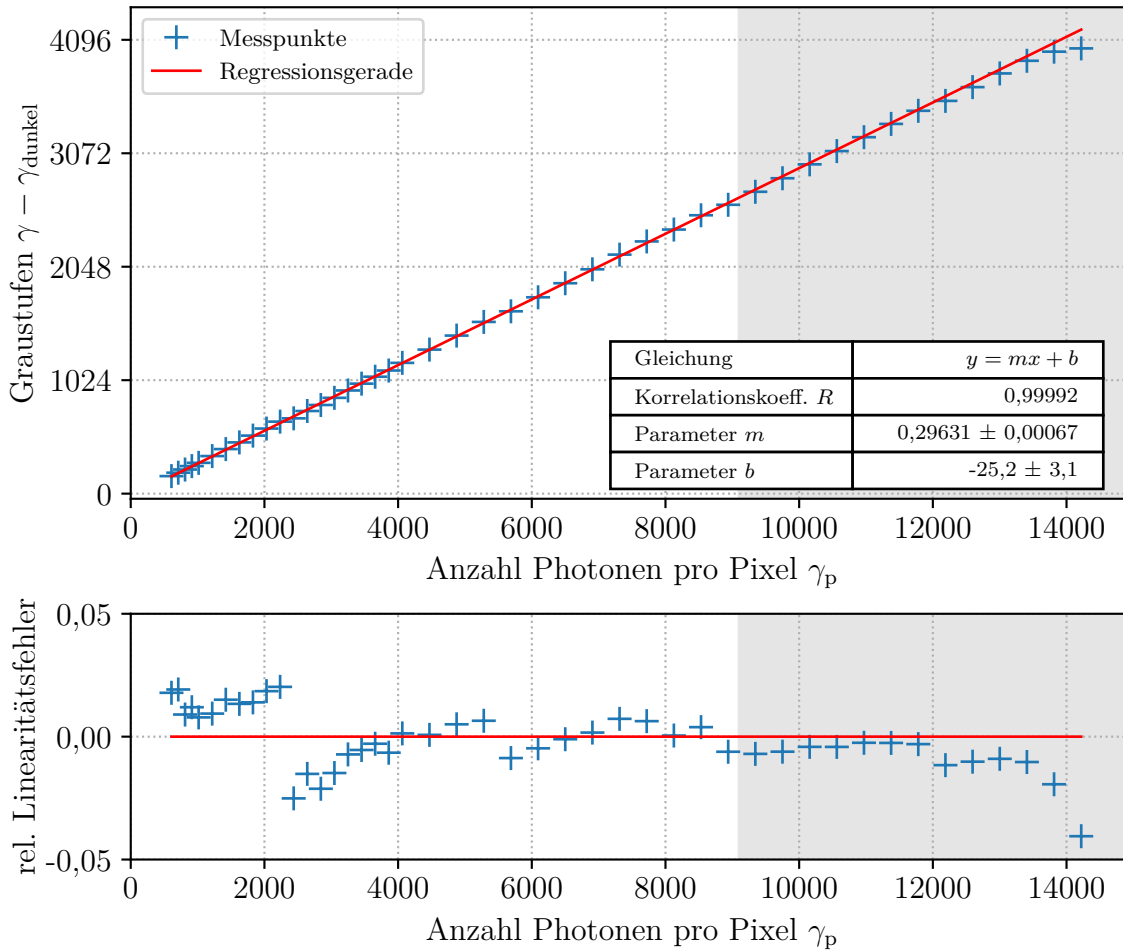


Abbildung 3.9: Der obere Graph zeigt die Empfindlichkeitskurve des Kamerasensors, das heißt die photoinduzierten Graustufen gegen die erwartete mittlere Anzahl an Photonen pro Pixel. Mit Hilfe einer linearen Regression wird die Responsivität  $R$  bestimmt. Die grau hinterlegten Messwerte werden bei der Regression gemäß des EMVA-Standards 1288 nicht berücksichtigt. Im unteren Graphen wird der relative Linearitätsfehler der linearen Regression dargestellt.

dass die Messwerte nicht normal-verteilt um die Regressionsgerade streuen. Insbesondere bei geringerer Photonenzahl sind deutliche Sprünge in der Verteilung erkennbar. Eine zweite Messreihe bestätigt die Sprünge an gleicher Stelle. Die lineare Regression durchläuft zudem nicht den Ursprung, das heißt für einen abgedunkelten Sensor würden sich dennoch photoinduzierte Graustufen ergeben. Die beschriebenen Effekte könnten auf eine interne Vorverarbeitung der Bilddaten innerhalb der Kamera hindeuten und beispielsweise durch eine interne Rauschkorrektur hervorgerufen werden (Hoshino, Nielsen und Nishimura, 2007). Trotz der systematischen Abweichungen kann in einer Gesamtbetrachtung der Zusammenhang annähernd als linear angenommen werden, sodass im Folgenden die Auswertung gemäß EMVA-Standard 1288 fortgesetzt wird.

Die Geradensteigung der linearen Regression der Empfindlichkeitskurve entspricht gemäß Gleichung (3.21) dem Produkt der Quanteneffizienz mit der Systemverstärkung. Da die Systemverstärkung bereits bekannt ist, lässt sich die Quanteneffizienz  $\eta_{qe} = 0,686 \pm 0,010$  bestimmen. Der Fehler leitet sich erneut aus dem Fehler der linearen Regression ab und



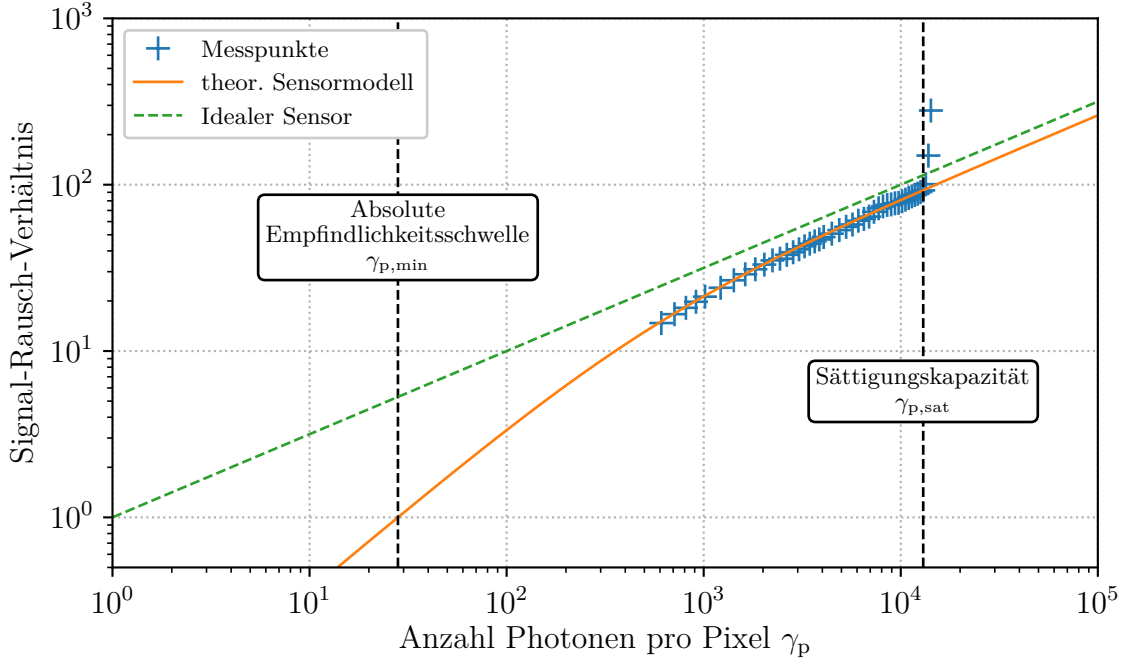


Abbildung 3.10: Der Graph zeigt das Signal-Rausch-Verhältnis, das gegen die Strahlungsenergie, beziehungsweise die mittlere auf einen Pixel auftreffende Anzahl Photonen, aufgetragen wird. Dargestellt werden die Messwerte (blau) des Sensors sowie die auf dem Photonen-Transfer-Modell basierende Modellvorhersage (orange). Der Kurvenverlauf kann dabei mit dem eines idealen Sensors verglichen werden (grün), der kein zeitliches Dunkelrauschen, kein Quantifizierungsrauschen und eine maximale Quanteneffizienz  $\eta_{qe,ideal} = 1$  besitzt.

berücksichtigt keine systematischen Fehler. Die bestimmten charakteristischen Kenngrößen können genutzt werden, um den Sensor mit einem idealen Sensor oder einem anderen Sensor zu vergleichen. Eine nützliche Übersicht stellt dabei die Darstellung des Signal-Rausch-Verhältnisses (SNR) dar. Es ist definiert als

$$\text{SNR} = \frac{\gamma - \gamma_{\text{dunkel}}}{\sigma_{\gamma}} \quad (3.30)$$

und kann mittels der Gleichung (3.21) und Gleichung (3.22) umgeschrieben werden zu

$$\text{SNR} = \frac{\eta_{qe} \gamma_p}{\sqrt{\sigma_d^2 + \sigma_q^2 / K^2 + \eta_{qe} \gamma_p}}. \quad (3.31)$$

Diese Gleichung stellt das SNR gemäß dem in Abbildung 3.6 gezeigten theoretischen Sensormodell dar und wird in der doppellogarithmischen Darstellung in Abbildung 3.10 mit dem gemessenen SNR verglichen. Die Eignung des zu Grunde liegenden Modells wird durch die Übereinstimmung der theoretischen und experimentellen Werte bestätigt. Neben der Prognose des theoretischen Sensormodells und den Messwerten ist in der Abbildung der Kurvenverlauf eines idealen Sensors dargestellt. Dieser Sensor unterliegt keinem Dunkelrauschen, keinem Quantisierungsrauschen und besitzt eine optimale Quanteneffizienz von  $\eta_{qe,ideal} = 1$ , das heißt jedes auftreffende Photon induziert je ein Elektron. Das Rauschen eines idealen Sensors entspricht dem Photonenrauschen und gleicht damit der Wurzel auftreffender Photonen. Die Wurzelfunktion entspricht in der doppellogarithmischen

Tabelle 3.3: Spezifikation des Sensors der Strahldiagnosekamera Beamage-4M der Firma Gentec Electro-Optics gemäß dem linearen EMVA-1288 Standard. Die angegebenen Messunsicherheiten leiten sich aus den linearen Regressionen ab und berücksichtigen keine systematischen Fehler.

Spezifikation	Bezeichnung/Wert	Beschreibung
Quanteneffizienz $\eta_{qe}$	$0,686 \pm 0,010$	$e^-/p$
Systemverstärkung $K$	$0,4322 \pm 0,0064$	$DN/e^-$
Zeitliches Dunkelrauschen $\sigma_d$	$18,7 \pm 1,3$	$e^-$
Zeitliches Dunkelrauschen $\sigma_{dunkel}$	$8,11 \pm 0,53$	DN
Absolute Empfindlichkeitsschwelle $\gamma_{e,min}$	19,2	$e^-$
Sättigungskapazität $\gamma_{e,sat}$	8900	$e^-$
Signal-Rausch-Verhältnis $SNR_{max}$	39,5	dB
Dynamikumfang DR	53,3	dB

Darstellung einer Geraden. Zusätzlich sind in der Abbildung 3.10 die absolute Empfindlichkeitsschwelle  $\gamma_{p,min} = 28$  sowie die Sättigungskapazität  $\gamma_{p,sat} = 13000$  des Sensors durch vertikale gestrichelte Linien dargestellt. Ersteres entspricht der minimal detektierbaren Anzahl Photonen ( $SNR = 1$ ) und letzteres der Anzahl auftreffender Photonen, bei der 0,1 % aller Pixel den maximal möglichen Graustufenwert ausgeben. Die Angaben lassen sich mithilfe der Quanteneffizienz in  $\gamma_{e,min} = 19.2$  beziehungsweise  $\gamma_{e,sat} = 8900$  umrechnen. Sie entsprechen der Anzahl induzierter Elektronen bei der jeweiligen Photonenzahl. Das maximal mögliche Signal-Rausch-Verhältnis  $SNR_{max} = 94$  entspricht der Wurzel der Sättigungskapazität. Der Dynamikumfang  $DR = 464$  des Sensors entspricht dem Verhältnis der Sättigungskapazität und der absoluten Empfindlichkeitsschwelle.

Eine Übersicht der ermittelten Parameter ist in Tabelle 3.3 dargestellt. Vergleicht man die Sensorwerte mit denen anderer Sensoren, so lassen sich die ermittelten Werte des vorliegenden Sensors plausibilisieren (Basler AG, 2020). Das Modell des in der Kamera verbauten Sensors ist nicht bekannt, jedoch weist der Sensor sowohl in den Herstellerspezifikationen als auch in den ermittelten Sensitivitäts- und Rauschparametern große Übereinstimmung mit dem Sensor CMV4000 (AMS, AUT) auf, der unter anderem auch mit einem entfernbarem Deckglas geliefert werden kann (ams AG, 2021). Der vorliegende Sensor besitzt im Vergleich zu anderen CMOS-Sensoren einen vergleichsweise geringen Dynamikumfang. Dies führt bei einer sehr kontrastreichen Aufnahme zu einem Informationsverlust, da der Dynamikumfang der aufgenommenen Szene den Dynamikumfang der Kamera übersteigt (Battiato, Castorina und Mancuso, 2002). Bei der vorliegenden Messaufgabe wird dies jedoch als unkritisch eingeschätzt. Bei einem Vergleich der ermittelten Werte mit anderen Sensoren muss beachtet werden, dass der verwendete Messaufbau nicht den Richtlinien des Standards genügt. Insbesondere die Inhomogenität in der Beleuchtung des Sensors führt voraussichtlich zu einer Unterschätzung der Sättigungskapazität, da die Areale des Sensors, die einer größeren Bestrahlungsstärke unterliegen, bereits bei geringeren Belichtungszeiten in Sättigung gehen. Vorteilhaft für die vorliegende Messaufgabe ist der vergleichsweise große Linearitätsbereich des Sensors. Hierdurch kann davon ausgegangen werden, dass der Intensitätsverlauf der Bildaufnahmen verzerrungsfrei wiedergegeben wird. Außerdem erlaubt der große Linearitätsbereich die Bildung von Intensitätsverhältnissen, die im Rahmen der Bildvorverarbeitung Anwendung finden (vgl. Kapitel 4.2).

# 4 Versuchsplan und Auswertungsmethode

In diesem Kapitel wird zunächst der Versuchsplan aufgestellt. Das Konzept der Messungen besteht darin, mehrere Interferogramme des Michelson-Interferometers zu kombinieren, um daraus die zweidimensionale Konzentrationsverteilung eines Querschnittes der Lösungsmittelatmosphäre zu ermitteln. Es werden Messreihen für linienförmige Fluidfilme in unterschiedlichen Substratneigungen sowie linienförmige Fluidfilme unterschiedlicher Breite genutzt. Anschließend wird die auf der Fourier-Transformation beruhende Auswertungsmethode der Interferogramme vorgestellt. Die zweidimensionale Konzentrationsverteilung eines Querschnitts der Lösungsmittelatmosphäre eines linienförmigen Fluidfilms wird exemplarisch ermittelt und im letzten Teilabschnitt des Kapitels werden elementare Teilfunktionen der Auswertungsmethode charakterisiert.

## 4.1 Versuchsplan

Der in Kapitel 3.2 präsentierte experimentelle Aufbau für die Untersuchung der Lösungsmittelatmosphäre über verdunstenden Fluidfilmen erzeugt Interferogramme, aus denen sich der durch den Lösungsmitteldampf verursachte Gangunterschied zwischen der Objektwelle und der Referenzwelle ermitteln lässt (vgl. Gleichung 3.15). Hierbei handelt es sich um eine in Lichtausbreitungsrichtung integrierte Größe, wodurch die dreidimensionale Konzentrationsverteilung auf die Ebene des Kamerasensors projiziert wird. Die Ermittlung der räumlichen Struktur der Lösungsmittelatmosphäre aus dem Gangunterschied erfordert daher im Allgemeinen tomografische Methoden. Aufgrund der erhöhten experimentellen und numerischen Komplexität werden sowohl simultane als auch sequentielle Messungen aus unterschiedlichen Projektionsrichtungen im Rahmen dieser Arbeit ausgeschlossen. Um dennoch Konzentrationsverteilungen aus dem Gangunterschied bestimmen zu können, werden linienförmige Fluidfilme genutzt. Diese werden parallel zur Lichtausbreitungsrichtung platziert, das heißt die kürzere Seite des Fluidfilms verläuft senkrecht zu der Richtung der Lichtausbreitung. Die linienförmigen Fluidfilme werden nachfolgend Linien genannt. Betrachtet man lange Linien, so kann der Beitrag des Anfangs und Endes der Linie zu dem Gangunterschied näherungsweise als konstant angesehen werden. Die Beziehung zwischen der Länge der Linie  $l$  und dem Gangunterschied  $\Delta s$  ergibt sich aus Gleichung (3.15) bei Ausführung des Integrals für die vereinfachende Annahme langer Linien zu

$$\Delta s = 2l\Delta n + s_0. \quad (4.1)$$

Hierbei stellt  $s_0$  den Beitrag des Anfangs und Endes der Linie und  $\Delta n$  die Differenz des Brechungsindex von der mit Lösungsmittel angereicherten Luft  $n_{\text{gas}}$  und der Luft

im Unendlichen  $n_\infty$  dar. Ab einer gewissen Länge wird der mittlere Abschnitt der Linie nicht mehr von dem Anfang und Ende beeinflusst und die zweidimensionale Konzentrationsverteilung bleibt in der Ausbreitungsrichtung des Lichts näherungsweise konstant. Der Faktor zwei in Gleichung (4.1) ergibt sich, da beim Michelson-Interferometer die Lösungsmittelatmosphäre des verdunstenden Fluidfilms zweifach durchlaufen wird (vgl. Kapitel 3.2.1). Misst man nun den Gangunterschied für mindestens zwei unterschiedliche Längen, so lässt sich der Beitrag des Anfangs und Endes der Linie  $s_0$  eliminieren und die Brechungsindexdifferenz  $\Delta n$  bestimmen. Zeichnet man den Gangunterschied  $\Delta s$  gegen die Linienlänge  $l$  auf, so erhält man gemäß Gleichung (4.1) einen linearen Zusammenhang, wobei die Steigung der Ausgleichsgeraden der doppelten Brechungsindexdifferenz  $\Delta n$  entspricht.

Auf Basis der in Kapitel 3.1.1 präsentierten Gleichung (3.12) lässt sich aus der Brechungsindexdifferenz  $\Delta n$  die Dichte  $\rho_{\text{sol}}$  beziehungsweise der Partialdruck  $p_{\text{sol}}$  des Lösungsmittels bestimmen. Aus dem Ansatz

$$n_{\text{gas}}^2 = (n_\infty + \Delta n)^2 = 1 + \frac{3}{RT} [(p_\infty - p_{\text{sol}}) P_\infty + p_{\text{sol}} P_{\text{sol}}] \quad (4.2)$$

folgt, dass

$$\frac{\rho_{\text{sol}}}{M_{\text{m,sol}}} = \frac{p_{\text{sol}}}{RT} = \frac{2n_\infty \Delta n + \Delta n^2}{3(P_{\text{sol}} - P_\infty)}. \quad (4.3)$$

Hierbei entspricht  $p_\infty$  dem Umgebungsdruck,  $P_\infty$  der effektiven Molrefraktion der Luft im Unendlichen,  $M_{\text{m,sol}}$  der molaren Masse des verdunstenden Lösungsmittels und  $P_{\text{sol}}$  der Molrefraktion desselben. Die effektive Molrefraktion der Luft  $P_\infty$  berechnet sich entweder aus einer gewichteten Summe der Luftbestandteile oder aus dem Brechungsindex der Umgebungsluft. Letzterer könnte beispielsweise mit dem Modell von Ciddor (1996) aus der Luftfeuchtigkeit, der Temperatur, des Drucks sowie der  $\text{CO}_2$ -Konzentration der umgebenden Luft berechnet werden. Aus den geschilderten Zusammenhängen folgt, dass eine zweidimensionale Konzentrationsverteilung der Lösungsmittelatmosphäre entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich der Linie ermittelt werden kann. Hierfür werden sequentiell die Gangunterschiede von Linien unterschiedlicher Länge gemessen und mithilfe von Gleichung (4.1) die Brechungsindexdifferenz und mithilfe von Gleichung (4.3) die Konzentrationsverteilung ermittelt.

In der vorliegenden Arbeit werden insgesamt vier Versuchsreihen durchgeführt. Hierbei wird in den ersten drei Versuchsreihen die Linienbreite  $w$  konstant gehalten und die Substratneigung variiert. Abbildung 4.1 veranschaulicht die Substratneigung der entsprechenden Versuchskonfiguration. Im vierten Versuch wird die Substratneigung konstant gehalten und die Linienbreite variiert. Die Tabellen 4.1 und 4.2 zeigen die konstanten beziehungsweise variablen Parameter der Versuchsreihen. Die Druckparameter sowie die Bildaufnahmeparameter werden bei allen vier Versuchsreihen konstant gehalten. Aufgrund der guten Druck- und Benetzungseigenschaften wird als Druckfluid ein binäres Gemisch aus Ethylenglykol (70 wt%) und Ethanol (30 wt%) eingesetzt. Es wird mit einer Auflösung von 360 dpi  $\times$  360 dpi in 20 Druckzyklen auf eine quadratische Platte aus Aluminium gedruckt (11 cm  $\times$  1 cm  $\times$  11 cm). Bei einem ungefähren Tropfenvolumen von 12 pl wird demnach eine Nassfilmdicke von etwa 50  $\mu\text{m}$  erwartet. Die Druckgeschwindigkeit beträgt 40 mm s<sup>-1</sup>. Der komplette Druckvorgang dauert etwa 55 s und ungefähr 15 s nach dem Ende des Druckvorgangs wird die Bildaufnahme gestartet. Der genaue Zeitabstand hängt dabei

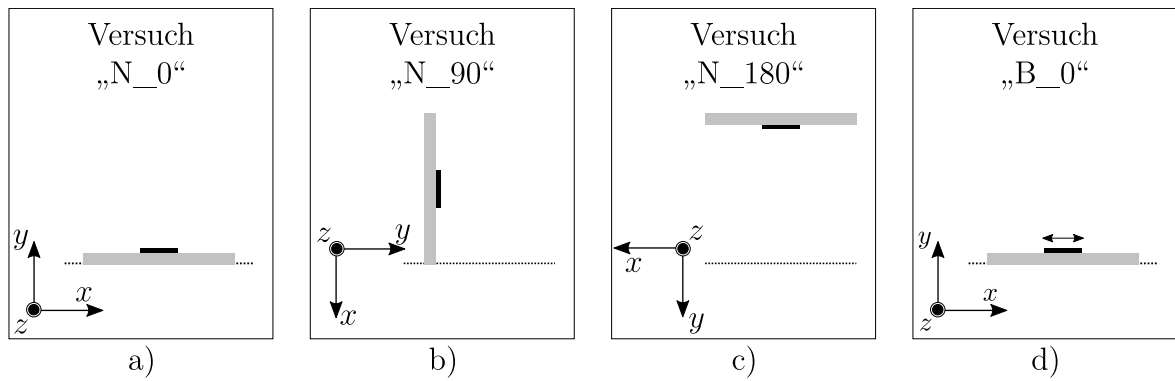


Abbildung 4.1: Die Abbildung zeigt eine schematische Darstellung der Versuchsreihen „N\_0“, „N\_90“ und „N\_180“ bei unterschiedlicher Substratneigung sowie eine schematische Darstellung der Versuchsreihe „B\_0“, bei der die Linienbreite variiert wird.

hauptsächlich von der untersuchten Substratposition ab. Es werden für jede Einzelmessung 60 Bildaufnahmen bei einer Bildaufnahmerate von  $2,5 \text{ s}^{-1}$  aufgenommen.

Bei der Versuchsreihe „N\_0“ wird die Linienbreite auf 3 mm festgelegt und die Linienlänge in zehn äquidistanten Längen zwischen 25 mm und 70 mm variiert. Die Substratneigung  $\beta'$  beträgt  $0^\circ$ , das heißt das Substrat ist waagrecht und die Flächennormale der bedruckten Seite des Substrats zeigt nach oben. Aufgrund einer unzureichenden Klimatisierung der Laborräumlichkeiten konnten die klimatischen Bedingungen während der Versuchsreihe nicht konstant gehalten werden. Insbesondere kam es während den Versuchsreihen zu einer kontinuierlichen Erwärmung der Raumluft und einer Reduzierung der relativen Luftfeuchtigkeit. Um den Einfluss in der späteren Auswertung berücksichtigen zu können, wurden die Temperatur, der Luftdruck sowie die Luftfeuchtigkeit in der Roboterzelle an den Versuchstagen minütlich gemessen und aufgezeichnet. Der während der Versuchsdauer gemessene Bereich ist für die entsprechenden Versuchsreihen in Tabelle 4.2 angegeben.

Die Versuchsreihen „N\_90“ und „N\_180“ werden für die gleichen Linienlängen und die gleiche Linienbreite wie Versuchsreihe „N\_0“ durchgeführt. Bei der Versuchsreihe „N\_90“ ist das Substrat senkrecht und die Flächennormale der bedruckten Seite des Substrats zeigt nach rechts. In der Versuchsreihe „N\_180“ verdunsten die Fluidfilme kopfüber, das heißt das Substrat ist erneut waagrecht, die Flächennormale zeigt nun jedoch nach unten

Tabelle 4.1: Konstante Parameter der Versuchsreihen.

Bezeichnung	Bezeichnung/Wert
Bildaufnahmen, Anzahl	60
Bildaufnahmerate	$2,5 \text{ s}^{-1}$
Druckauflösung	$360 \text{ dpi} \times 360 \text{ dpi}$
Druckfluid	Ethylenglykol (70 wt%), Ethanol (30 wt%)
Druckgeschwindigkeit	$40 \text{ mm s}^{-1}$
Drucksubstrat	Aluminium ( $11 \text{ cm} \times 1 \text{ cm} \times 11 \text{ cm}$ )
Druckzyklen, Anzahl	20

Tabelle 4.2: Variable Parameter der Versuchsreihen.

Versuch	Bezeichnung	Wert
„N_0“	Linienlänge	$l = [25 \text{ mm}; 30 \text{ mm}; 35 \text{ mm}; 40 \text{ mm}; 45 \text{ mm}; 50 \text{ mm}; 55 \text{ mm}; 60 \text{ mm}; 65 \text{ mm}; 70 \text{ mm}]$
	Linienbreite	$w = 3 \text{ mm}$
	Substratneigung	$\beta' = 0^\circ$
	Luftdruck	$p = 100,1 \text{ kPa}$
	Temperatur	$T = 26,7^\circ \text{C bis } 27,6^\circ \text{C}$
	rel. Luftfeuchtigkeit	$\phi = 55,2\% \text{ bis } 58,0\%$
„N_90“	Linienlänge	$l = [25 \text{ mm}; 30 \text{ mm}; 35 \text{ mm}; 40 \text{ mm}; 45 \text{ mm}; 50 \text{ mm}; 55 \text{ mm}; 60 \text{ mm}; 65 \text{ mm}; 70 \text{ mm}]$
	Linienbreite	$w = 3 \text{ mm}$
	Substratneigung	$\beta' = 90^\circ$
	Luftdruck	$p = 99,8 \text{ kPa}$
	Temperatur	$T = 24,9^\circ \text{C bis } 25,7^\circ \text{C}$
	rel. Luftfeuchtigkeit	$\phi = 50,1\% \text{ bis } 52,7\%$
„N_180“	Linienlänge	$l = [25 \text{ mm}; 30 \text{ mm}; 35 \text{ mm}; 40 \text{ mm}; 45 \text{ mm}; 50 \text{ mm}; 55 \text{ mm}; 60 \text{ mm}; 65 \text{ mm}; 70 \text{ mm}]$
	Linienbreite	$w = 3 \text{ mm}$
	Substratneigung	$\beta' = 180^\circ$
	Luftdruck	$p = 99,8 \text{ kPa}$
	Temperatur	$T = 25,6^\circ \text{C bis } 26,6^\circ \text{C}$
	rel. Luftfeuchtigkeit	$\phi = 51,9\% \text{ bis } 55,2\%$
„B_0“	Linienlänge	$l = [30 \text{ mm}; 40 \text{ mm}; 50 \text{ mm}; 60 \text{ mm}; 70 \text{ mm}]$
	Linienbreite	$w = [1,1 \text{ mm}; 2,4 \text{ mm}; 5,1 \text{ mm}; 11 \text{ mm}]$
	Substratneigung	$\beta' = 0^\circ$
	Luftdruck	$p = 100,4 \text{ kPa}$
	Temperatur	$T = 23,1^\circ \text{C bis } 25,4^\circ \text{C}$
	rel. Luftfeuchtigkeit	$\phi = 52,8\% \text{ bis } 54,8\%$

in Richtung der Gravitation.

Die Versuchsreihe „B\_0“ untersucht den Einfluss der Linienbreite bei einer Substratneigung von  $0^\circ$ . Über die Variation der Linienbreite wird die dimensionslose Grashof-Zahl variiert. Diese berechnet sich gemäß (vgl. Kapitel 2.3)

$$Gr = \left| \frac{\rho_s - \rho_\infty}{\rho_\infty} \right| \frac{gL^3}{\nu^2}, \quad (4.4)$$

wobei die erwartete Dichte der mit Ethanol gesättigten Luft bei etwa  $\rho_s = 1193 \text{ g m}^{-3}$  liegt und die Dichte der Luft im Unendlichen  $\rho_\infty = 1174 \text{ g m}^{-3}$  etwa der Dichte der reinen Luft entspricht. Die kinematische Viskosität von Luft liegt für die Versuchsbedingungen etwa bei  $\nu = 1,5 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  (Dollet und Boulogne, 2017). Mit den gewählten Linienbreiten, die als charakteristische Länge  $L$  gemäß Gleichung (4.4) gewählt werden, wird eine Grashof-Zahl

von 0,1; 1; 10 und 100 angestrebt. Um den Versuchsumfang der Versuchsreihe zu begrenzen, wird die Linienlängenvariation auf fünf Längen zwischen 30 mm und 70 mm reduziert.

Für eine Verbesserung der statistischen Relevanz der Messergebnisse wird jede Kombination der Versuchsparameter fünfmal wiederholt. Für die vier Versuchsreihen ergibt sich damit ein Gesamtumfang von

$$N_{\text{ges}} = 3 \cdot 50 + 100 = 250 \quad (4.5)$$

gedruckten Linien, wobei der Umfang der Versuchsreihen „N\_0“, „N\_90“ und „N\_180“ jeweils 50 Linien und der Umfang der Versuchsreihe „B\_0“ 100 Linien beträgt. Dies entspricht insgesamt 15000 auszuwertenden Bildaufnahmen, die eine automatisierte Auswertungsroutine der Interferogramme erfordern. Diese Auswertungsroutine wird im folgenden Kapitel vorgestellt.

## 4.2 Auswertungsmethode

Die automatisierte Auswertung der Interferogramme des Michelson-Interferometers wird in der Programmiersprache Python umgesetzt. Die freie und universell verfügbare Programmiersprache Python ist weitverbreitet und stellt einen Standard in der rechnergestützten, wissenschaftlichen Forschung dar (Millman und Aivazis, 2011). Durch eine umfangreiche Standardbibliothek sowie einer sehr großen Vielfalt an Programmbibliotheken von Drittanbietern (Dubois, 2007) eignet sich die Plattform sehr gut für die Bildverarbeitung, insbesondere durch die Programmbibliothek SciPy (Virtanen et al., 2020) und die Programmbibliothek NumPy (Harris et al., 2020) für numerische Berechnungen. Die weiteren in der vorliegenden Arbeit verwendeten Programmbibliotheken können der Tabelle A.1 im Anhang entnommen werden. Die Tabelle A.2 nennt die technischen Spezifikationen des für die vorliegenden Auswertungen genutzten Computers.

Um eine reproduzierbare Auswertung zu gewährleisten, wird eine grafische Benutzeroberfläche für die Auswertung der Interferogramme umgesetzt. Ein Ausschnitt dieser Benutzeroberfläche ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Da im Allgemeinen die einzustellenden Parameter der Auswertungsroutine für unterschiedliche Versuchsreihen voneinander abweichen, können entsprechende Konfigurationsdateien gespeichert und geladen werden. Diese beinhalten sämtliche Parameter und ermöglichen somit eine nachträgliche Prüfung der Einzelschritte der Auswertung. Die Auswertungsroutine eines Interferogramms lässt sich in drei Funktionsabschnitte gliedern: die Analyse der Referenzaufnahmen, die Analyse der Interferogramme sowie das *Phase Unwrapping*. In der Analyse der Referenzaufnahmen wird die Bildaufnahme geladen, die Kante des Substrats lokalisiert und die Trägerfrequenz der Interferenzstreifen ermittelt. Bei der Analyse des Interferogramms wird die durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung ermittelt. Aufgrund der Periodizität der elektromagnetischen Welle sind die Phasenverschiebungen mehrdeutig und zunächst auf einen Bereich  $(-\pi, \pi]$  begrenzt. Nach der Entfernung der Phasensprünge im *Phase Unwrapping* liegt die Phasenverschiebung als stetige Verteilung vor und die Auswertung einer Einzelaufnahme ist abgeschlossen. In der Nachbearbeitung werden die extrahierten Phasenverschiebungsverteilungen mehrerer Einzelmessungen kombiniert und daraus eine zweidimensionale Konzentrationsverteilung der Lösungsmittelatmosphäre entlang eines

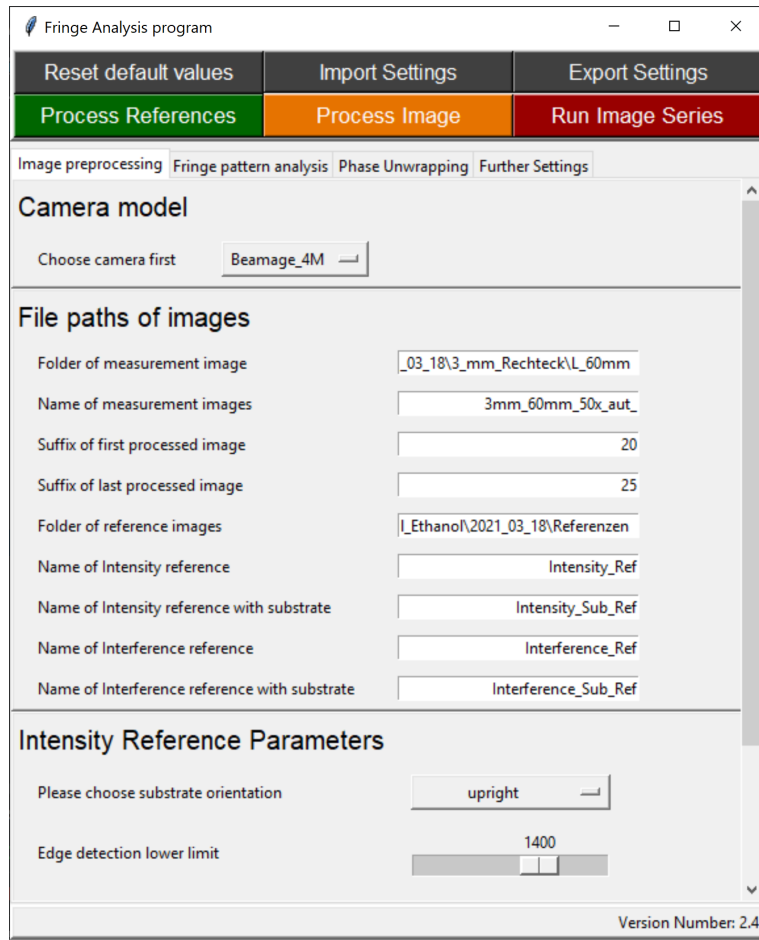


Abbildung 4.2: Ausschnitt der graphischen Benutzeroberfläche der Auswertungsroutine in Python.

Querschnitts durch den mittleren Bereich der gedruckten Linie ermittelt (vgl. Kapitel 4.1). Der Programmcode der Auswertungsroutine sowie eine Auswahl der Bildaufnahmen wurden auf der Plattform TUdatalib veröffentlicht (Braig, 2023).

Die Struktur des vorliegenden Kapitels hält sich an die durch den Algorithmus vorgegebene Reihenfolge. Zunächst wird die Analyse der Referenzaufnahmen präsentiert, woran sich die weiteren Funktionsabschnitte anschließen. Teile der hier präsentierten Auswertungsmethode, insbesondere die Umsetzung der Interferenzbildanalyse sowie die Entwicklung eines eigenen *Phase Unwrapping*-Algorithmus wurden von Florian Narrog in der vom Autor betreuten Masterarbeit umgesetzt (Narrog, 2020). Für eine umfassende Vorstellung und Diskussion der in diesem Kapitel verwendeten Bildverarbeitungsalgorithmen sei an dieser Stelle auf die Bücher von Jähne (2012) und Kemaio (2013) verwiesen.

### 4.2.1 Analyse der Referenzaufnahmen

Vor der Auswertung der Interferenzbildaufnahme müssen zunächst die Substratposition lokalisiert und die Trägerfrequenz der Interferenzstreifen bestimmt werden. Hierfür werden vor jeder Versuchsreihe Referenzaufnahmen aufgenommen. Es handelt sich dabei um



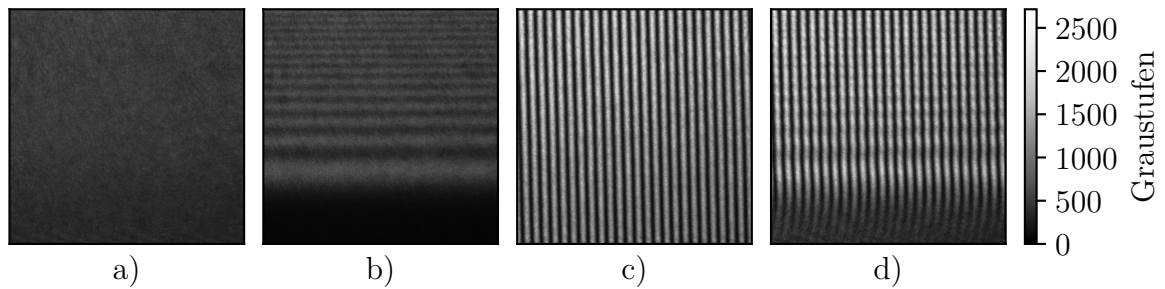


Abbildung 4.3: Die Abbildung stellt Bildausschnitte der „Intensitätsreferenz“ (a), der „Intensitätsreferenz mit Substrat“ (b), der „Interferenzreferenz“ (c) und der „Interferenzreferenz mit Substrat“ (d) dar. Um die hohen Frequenzen sichtbar zu machen, wird jeweils der gleiche Bildausschnitt (500 px  $\times$  500 px) der Gesamtaufnahme (2048 px  $\times$  2048 px) präsentiert.

insgesamt vier Referenzaufnahmen. Ein Ausschnitt der Referenzaufnahmen der Versuchsreihe „N\_0“ ist in Abbildung 4.3 sichtbar. Für die ersten beiden Referenzaufnahmen wird der Referenzarm des Interferometers abgedunkelt, das heißt der Kamerasensor detektiert das Licht des Messarms. Es wird eine „Intensitätsreferenz“ und eine „Intensitätsreferenz mit Substrat“ aufgenommen. Bei letzterer wird zusätzlich das unbedruckte Substrat vom Roboter in die spätere Messposition und damit in den Strahlengang des Messarms gehalten. Aufgrund der Substratkante im Strahlengang wird ein Beugungsmuster sichtbar, das später genutzt wird, um die Substratposition zu bestimmen. Das Substrat wird zunächst wieder aus dem Strahlengang entfernt und für die dritte und vierte Referenzaufnahme der Strahlengang des Referenzarms geöffnet. In der „Interferenzreferenz“ wird dementsprechend ein Interferogramm sichtbar, das aus der Überlagerung der EM-Welle des Messarms und der EM-Welle des Referenzarms resultiert. Die in Abbildung 4.3 c) sichtbaren, vertikalen Interferenzstreifen werden bewusst induziert, indem der Spiegel des Referenzarms leicht schräg gestellt wird. Die Ausnutzung dieser Trägerfrequenz der Interferenzstreifen vereinfacht die spätere Analyse des Interferogramms, wobei die dargestellte Referenz für die Bestimmung dieser Trägerfrequenz genutzt wird. Für die vierte Referenz, die „Interferenzreferenz mit Substrat“ wird das unbedruckte Substrat erneut in der Messposition im Messarm platziert. Diese Referenz wird als Phasenreferenz genutzt, das heißt in der späteren Analyse der Interferogramme wird die relative Phasenverschiebung bezüglich dieser Referenz berechnet.

### Lokalisierung der Substratkante

Die „Intensitätsreferenz mit Substrat“ sowie die „Intensitätsreferenz“ werden genutzt, um die Substratkante in den Bildaufnahmen zu lokalisieren. Der 6-Achs-Knickarmroboter hat eine Positionswiederholgenauigkeit gemäß ISO 9283 von  $\pm 0,02$  mm (KUKA Deutschland GmbH, 2021). Dies entspricht bei der gegebenen Pixelgröße des Kamerasensors von  $5,5 \mu\text{m}$  etwa vier Pixeln. Es wird daher vereinfachend angenommen, dass die Messposition und damit auch die Position der Substratkante in den Bildaufnahmen immer die Gleiche ist. Das heißt die Position der Substratkante wird einmalig in der „Intensitätsreferenz mit Substrat“ bestimmt und dann für alle folgenden Messungen der Versuchsreihe übernommen.

Die eingesetzte Laserdiode besitzt ein sehr schmales Emissionsspektrum, welches näherungsweise durch monochromatisches Licht beschrieben werden kann. Trifft eine ebene Welle monochromatischer Strahlung auf eine gerade Kante, so wird sie daran gebeugt und es entsteht ein Beugungsmuster in der Sensorebene. Die zu erwartende Intensitätsverteilung auf dem Sensor kann mithilfe des Kirchhoffschen Beugungsintegrals in der Nahfeld-Näherung (Fresnel-Beugung) bestimmt werden. Nähere Informationen zu der geometrischen und der analytischen Lösung des Beugungsintegrals können Feynman, Leighton und Sands (2010) beziehungsweise Finot und Boscolo (2022) entnommen werden.

Das Beugungsmuster der „Intensitätsreferenz mit Substrat“ entspricht qualitativ der theoretisch erwarteten Intensitätsverteilung eines Beugungsmusters einer geraden Kante (vgl. Abbildung 4.3 b). Aus diesem Grund wird die analytische Lösung des Beugungsintegrals genutzt, um aus der Intensitätsverteilung der Referenz die Position der Substratkante zu ermitteln. Es handelt sich hierbei um eine Näherung, da es sich im vorliegenden Fall aufgrund des Strahlengangs im Messarm des Interferometers um zwei aufeinander folgende Kanten handelt. Das Licht trifft einmal auf die Vorderkante des Substrats, wird dann vom Spiegel reflektiert und trifft erneut auf die rückseitige Substratkante. Im Rahmen der Messungen konnten jedoch keine signifikanten Abweichungen von der Intensitätsverteilung der einfachen Kantenbeugung festgestellt werden.

Für eine robuste Erfassung der Position der Substratkante wird zunächst die durchschnittliche Neigung der Linien erhöhter Intensität, also der Beugungsmaxima bestimmt. Um den Rechenaufwand zu reduzieren, wird eine Kopie der Referenzaufnahme mittels bilinearer Interpolation um 80 % verkleinert und die Datentiefe auf 8 bit reduziert. Der Einfluss von Bildrauschen wird mittels eines quadratischen gaußschen Filters reduziert und die Beugungsmaxima mittels des Canny-Algorithmus verstärkt. Die Positionen und Neigungen der Beugungsmaxima werden mit einer Hough-Transformation ermittelt und der durchschnittliche Neigungswinkel aller Beugungsmaxima berechnet. Die Neigung der Beugungsmaxima entspricht dabei der Neigung des Substrats. Bei der vorliegenden Referenzaufnahme beträgt der durchschnittliche Neigungswinkel und damit die Substratneigung  $0,28^\circ$  relativ zur Horizontalen. Über die gesamte Sensorbreite entspricht dies einem Anstieg der Substratkante um etwa 10 px.

Die unveränderte „Intensitätsreferenz mit Substrat“ wird mit einer kubischen Spline-Interpolation um den negativen Neigungswinkel rotiert, sodass die Beugungsmaxima horizontal verlaufen. Außerdem wird die „Intensitätsreferenz“ in gleicher Weise rotiert. Die Pixelreihen der rotierten „Intensitätsreferenz mit Substrat“ werden einzeln aufaddiert und durch die Summe der Pixelreihen der rotierten „Intensitätsreferenz“ dividiert. Hierdurch erhält man einen gemittelten Intensitätsverlauf orthogonal zur Substratkante, der auf die „Intensitätsreferenz“ normiert ist. Aufgrund von Reflexionen an der Vorderseite des Substrats fällt die Lichtintensität der „Intensitätsreferenz mit Substrat“ unterhalb der Substratkante nicht auf null ab (vgl. Abbildung 4.3 b). Die restliche Intensität wird daher unter Berücksichtigung der Normierung vom Intensitätsverlauf abgezogen und man erhält den in Abbildung 4.4 a) dargestellten, normierten Intensitätsverlauf. Die normierte Intensität steigt von null auf ein Intensitätsmaximum und schwingt dann mit abnehmender Amplitude und zunehmender Frequenz um den Wert eins. Der Wert eins entspricht bei der gewählten Normierung der Intensität der „Intensitätsreferenz“ an entsprechender Stelle. Der kurzzeitige steile Anstieg bei der Pixelreihe null stellt eine Begleiterscheinung der

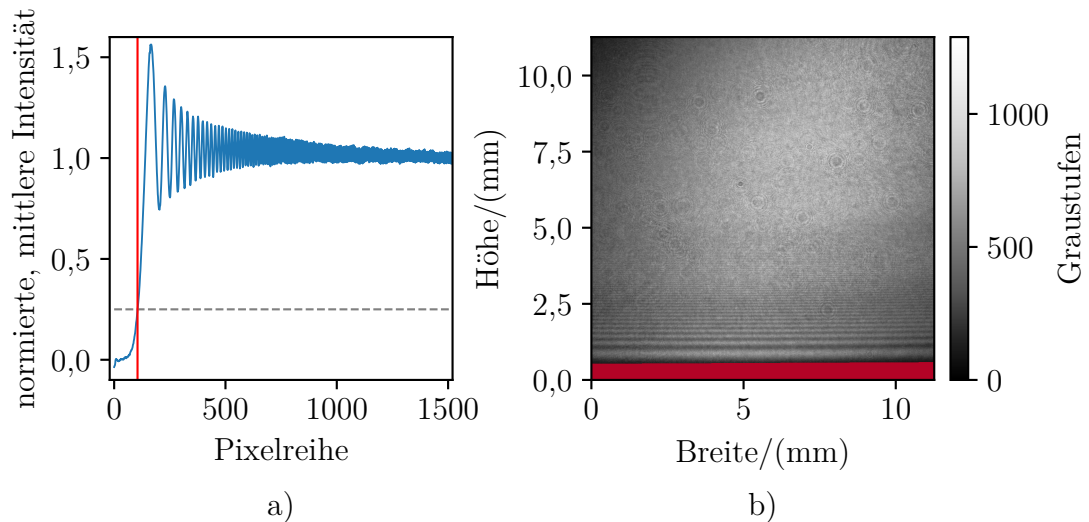


Abbildung 4.4: In dem linken Diagramm (a) wird die normierte mittlere Intensität der Pixelreihen gegen die Position der Pixelreihe aufgetragen. Die Pixelreihen verlaufen dabei senkrecht zur Substratkante und die Intensität wurde mithilfe der „Intensitätsreferenz“ normiert. Die rechte Bildaufnahme (b) zeigt die „Intensitätsreferenz mit Substrat“, wobei das Substrat durch eine rote Fläche maskiert wurde.

Bildrotation dar. Die Kante des Substrats liegt nun gemäß der Theorie an der Position, an der die detektierte Intensität 25 % der einfallenden Intensität beträgt (Feynman, Leighton und Sands, 2010). Dies entspricht der Position, an der der normierte Intensitätsverlauf den Wert 0,25 aufweist. Die entsprechende Pixelreihe ist in der Abbildung mit der vertikalen, roten Linie markiert.

Die festgestellte Pixelreihe muss anschließend in eine Substratposition im ursprünglichen, nicht rotierten Bild zurückgerechnet werden. Hierfür wird eine Bildmaske erstellt, deren Größe der Größe der Bildaufnahmen der Kamera entspricht. Die Reihen der Bildmaske oberhalb der festgestellten Pixelreihe werden mit Nullen gefüllt, die Reihen unterhalb werden mit Einsen gefüllt. Daraufhin wird die Bildmaske ohne Interpolation um den zuvor festgestellten Neigungswinkel gedreht. Das Ergebnis stellt eine Bildmaske dar, die sowohl die Neigung auch als die Position des Substrates berücksichtigt. Die Abbildung 4.4 b) zeigt die Bildaufnahme der „Intensitätsreferenz mit Substrat“, wobei das Substrat am unteren Bildrand durch die rote Fläche maskiert wird. Diese Bildmaske wird gespeichert und für die folgenden Messungen der Versuchsreihe übernommen.

### Bestimmung der Trägerfrequenz

Die „Interferenzreferenz“ wird genutzt, um die Trägerfrequenz der Interferenzstreifen zu ermitteln. Abbildung 4.5 a) zeigt einen Bildausschnitt der Referenz. Die Interferenzstreifen, die durch das bewusste Schrägstellen des Spiegels im Interferenzarm erzeugt werden, verlaufen nahezu vertikal. Ein horizontaler Schnitt durch die Bildaufnahme zeigt einen sinusförmigen Intensitätsverlauf. Die Intensität des Interferogramms der „Interferenzreferenz“

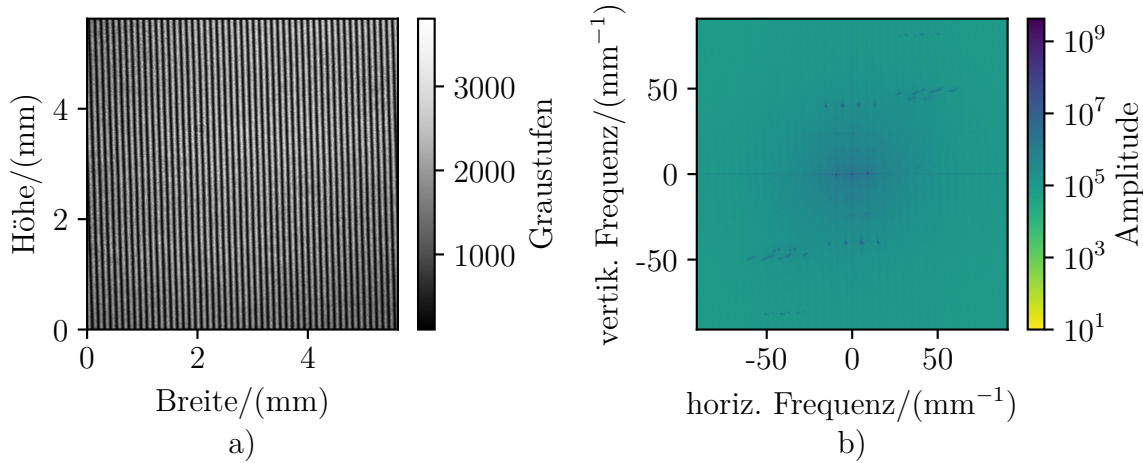


Abbildung 4.5: Die linke Abbildung (a) zeigt die „Interferenzreferenz“. Um die hohen Frequenzen sichtbar zu machen, wird ein Bildausschnitt (5,6 mm × 5,6 mm) der Gesamtaufnahme (11,3 mm × 11,3 mm) präsentiert. Das Frequenzspektrum der „Interferenzreferenz“ (b), das durch die zweidimensionale, diskrete Fourier-Transformation der Gesamtaufnahme erhalten wurde, ist rechts dargestellt.

lässt sich stark vereinfacht folgendermaßen darstellen (Kemao, 2013)

$$I_{\text{freq}}(x,y) = a_{\text{const}} + b_{\text{const}} \cos(2\pi f_{\text{cx}}x + 2\pi f_{\text{cy}}y). \quad (4.6)$$

Hierbei entspricht  $a_{\text{const}}$  einer näherungsweise räumlich konstanten Hintergrundintensität und  $b_{\text{const}}$  einer ebenfalls näherungsweise konstanten Amplitude der Interferenzstreifen. Um die horizontale Komponente der Trägerfrequenz  $f_{\text{cx}}$  beziehungsweise die vertikale Komponente  $f_{\text{cy}}$  zu quantifizieren, wird das Frequenzspektrum der Bildaufnahme mittels einer zweidimensionalen, diskreten Fourier-Transformation (2D-DFT) berechnet (vgl. Kapitel 2.4). Der Betrag der komplexen 2D-DFT, beziehungsweise die Amplitude des Frequenzspektrums ist in Abbildung 4.5 b) dargestellt. Die Fourier-Transformation von Gleichung (4.6) lautet

$$(\mathcal{F}I_{\text{freq}})(f_x, f_y) = a_{\text{const}}\delta(f_x, f_y) + \frac{b_{\text{const}}}{2}[\delta(f_x - f_{\text{cx}}, f_y - f_{\text{cy}}) + \delta(f_x + f_{\text{cx}}, f_y + f_{\text{cy}})], \quad (4.7)$$

wobei  $\delta$  die zweidimensionale Dirac-Funktion,  $f_x$  die horizontale und  $f_y$  die vertikale Koordinate im Frequenzraum darstellt. Gemäß dem vereinfachten Modell werden drei maßgebliche Beiträge im Frequenzspektrum erwartet. Diese drei Beiträge entsprechen den drei zentrumsnahen Maxima im Frequenzspektrum in Abbildung 4.5 b). Das Maximum im Ursprung entspricht der Hintergrundintensität, die Maxima links und rechts davon entsprechen dem Beitrag der Trägerfrequenz. Letztere können beide zur Bestimmung der Trägerfrequenz genutzt werden, wobei in der vorliegenden Arbeit stets das rechte Maximum genutzt wird. Für die „Interferenzreferenz“ in Abbildung 4.5 liegt die horizontale Frequenz bei  $f_{\text{cx}} = 9,14 \text{ mm}^{-1}$  und die vertikale Frequenz bei  $f_{\text{cy}} = 0,27 \text{ mm}^{-1}$ .

Die weiteren Amplitudenmaxima, die in Abbildung 4.5 b) insbesondere bei höheren vertikalen Frequenzen zu sehen sind, resultieren aus sekundären Interferenzen. Die maximale Amplitude der sekundären Interferenzen ( $\approx 1 \cdot 10^7$ ) liegt jedoch unter den Beiträgen der Trägerfrequenzen ( $\approx 1 \cdot 10^9$ ). Die sekundären Interferenzen können beispielsweise

durch Welligkeiten der optischen Elemente, durch Mehrfachreflexionen im Interferometer oder eine unzureichende Ausrichtung des Raumfilters hervorgerufen werden. Es wurde im Rahmen der Versuche festgestellt, dass der kubische Strahlteiler die Störungen maßgeblich verursacht. Die sekundären Interferenzen werden im Rahmen der nachfolgenden Analyse der Interferogramme berücksichtigt und deren Einfluss mithilfe geeigneter Frequenzfilter reduziert. Die ermittelte Trägerfrequenz wird gespeichert und für die folgenden Messungen der Versuchsreihe übernommen. Lokale Abweichungen der Interferogramme von der bestimmten Trägerfrequenz werden durch den später folgenden Phasenvergleich mit der „Interferenzreferenz mit Substrat“ berücksichtigt und ausgeglichen.

## 4.2.2 Analyse der Interferogramme

Nachdem die Analyse der Referenzaufnahmen abgeschlossen ist, beziehungsweise die Substratposition und die Trägerfrequenz der Interferenzstreifen bestimmt wurden, wird ein Interferogramm der Versuchsreihe analysiert. Im Folgenden wird diese Analyse beispielhaft anhand eines Interferogramms der Versuchsreihe „N\_0“ dargestellt. Die gedruckte Linie des Beispiels stellt eine aufrechte, 70 mm lange und 3 mm breite Linie dar. Abbildung 4.6 zeigt auf der linken Seite einen Ausschnitt der nicht bedruckten „Interferenzreferenz mit Substrat“ (a) sowie den gleichen Bildausschnitt für das bedruckte Substrat (c). Die durch die verdunstende Linie hervorgerufene Lösungsmittelatmosphäre über der gedruckten Linie führt im Vergleich zur „Interferenzstreifen mit Substrat“ zu einer Auslenkung der Interferenzstreifen zur linken Seite. Die Kontur der gedruckten Linie, die sich mittig an der Oberseite des rot maskierten Substrats befindet, ist aufgrund der geringen Schichtdicke ( $\approx 50 \mu\text{m}$ ) und der inhärenten Lichtbeugung nicht erkennbar. Das zuvor horizontale Beugungsmuster der Substratkante wird aufgrund des Tropfens geringfügig nach oben verschoben. Insbesondere unmittelbar oberhalb des Substrats beziehungsweise oberhalb der verdunstenden Linie ist die Auslenkung der Interferenzstreifen erkennbar. Hier ist die Lösungsmittelkonzentration und die dadurch hervorgerufene Phasenverschiebung erwartungsgemäß am höchsten.

Die in Abbildung 4.6 dargestellten Interferogramme können mathematisch wie folgt beschrieben werden (ebd.)

$$I(x,y) = a(x,y) + b(x,y) \cos(\Delta\varphi_s(x,y) + 2\pi f_{cx}x + 2\pi f_{cy}y) + I_n(x,y) \quad (4.8)$$

$$= a(x,y) + c_{\text{ph}}(x,y)e^{i2\pi(f_{cx}x+f_{cy}y)} + c_{\text{ph}}^*e^{-i2\pi(f_{cx}x+f_{cy}y)} + I_n(x,y). \quad (4.9)$$

Obige Gleichung lässt sich aus Gleichung (3.18) ableiten, wobei  $a(x,y) = a_0^2(x,y) + a_1^2(x,y)$  der Hintergrundintensität,  $b(x,y) = 2a_0(x,y)a_1(x,y)$  der Amplitude der Interferenzstreifen und

$$c_{\text{ph}}(x,y) = \frac{1}{2}b(x,y)e^{i\Delta\varphi_s(x,y)} \quad (4.10)$$

einem sogenannten *Exponential Phase Field* (EPF) entspricht. Im Gegensatz zu Gleichung (4.6) handelt es sich bei  $a(x,y)$  und  $b(x,y)$  um räumlich variable Größen. Zusätzlich wurde die durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung zwischen dem Mess- und Referenzarm des Interferometers  $\Delta\varphi_s(x,y)$  und ein Rauschterm  $I_n(x,y)$  berück-

sichtigt. Die Fourier-Transformation von Gleichung (4.9) lautet (Kemao, 2013)

$$\begin{aligned}
 (\mathcal{F}I)(f_x, f_y) = & (\mathcal{F}a)(f_x, f_y) + (\mathcal{F}c_{\text{ph}})(f_x - f_{c_x}, f_y - f_{c_y}) \\
 & + (\mathcal{F}c_{\text{ph}}^*)(f_x + f_{c_x}, f_y + f_{c_y}) + (\mathcal{F}I_n)(f_x, f_y)
 \end{aligned}
 \tag{4.11}$$

Hierbei handelt es sich wie bereits zuvor bei Gleichung (4.7) um drei Terme, die sich bei genügend hoher Trägerfrequenz  $f_{c_x}$  beziehungsweise  $f_{c_y}$  im Frequenzraum voneinander separieren. Der vierte Term repräsentiert im Allgemeinen weißes Rauschen, das über den gesamten Frequenzraum auftritt. Da die ersten drei Terme von besonderer Relevanz sind, werden diese nachfolgend kurz diskutiert.

Der erste Term entspricht der Fourier-Transformation der Hintergrundintensität  $a(x, y)$ , wobei die Hintergrundintensität die Summe der quadratischen Amplitude der EM-Welle des

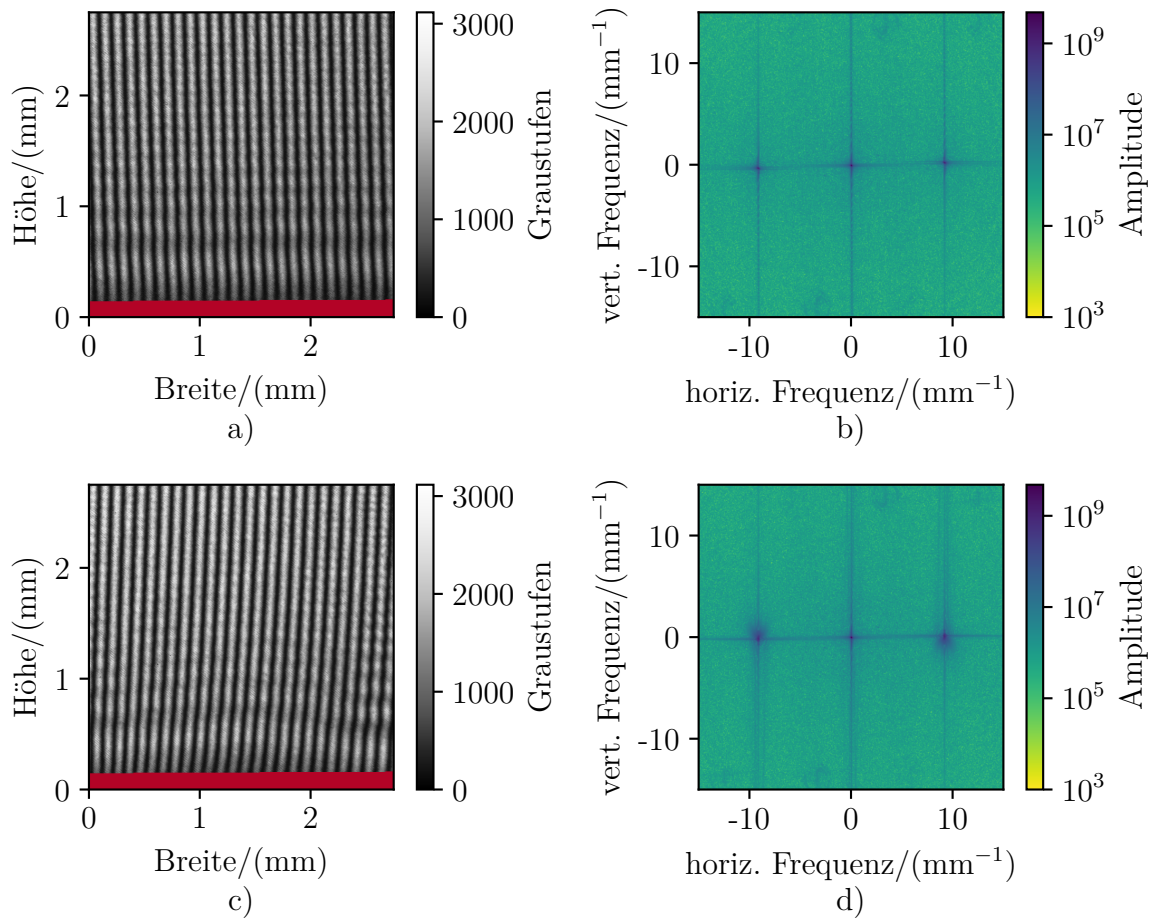


Abbildung 4.6: Die Abbildung zeigt links einen Ausschnitt der „Interferenzreferenz mit Substrat“ (a) sowie den gleichen Ausschnitt eines Interferogramms einer verdunstenden Linie aus Versuchsreihe „N\_0“ (c). Die Interferenzstreifen der Trägerfrequenz werden aufgrund des verdunstenden Lösungsmittels ausgelekt. Die rote Fläche maskiert die Position des Substrats. Die 2D-DFT der „Interferenzreferenz mit Substrat“ (b) und die 2D-DFT des Interferogramms der verdunstenden Linie (d) verdeutlichen die Veränderung im Frequenzraum, wobei insbesondere die Maxima der Trägerfrequenz (bei einer horizontalen Frequenz von etwa  $-9 \text{ mm}^{-1}$  und  $9 \text{ mm}^{-1}$ ) die gewünschten Informationen enthalten.

Messarms und der quadratischen Amplitude der EM-Welle des Referenzarms darstellt (vgl. Gleichung 3.18). Sie ändert sich nur langsam, weshalb sich dieser Term im Frequenzraum auf einen niederfrequenten Bereich nahe dem Ursprung konzentriert.

Beim zweiten und dritten Term handelt es sich um die Fourier-Transformation des EPF, dessen Zentrum aufgrund der Trägerfrequenz zu den Punkten  $(f_{cx}, f_{cy})$  beziehungsweise  $(-f_{cx}, -f_{cy})$  im Frequenzraum verschoben wird. Dies lässt sich anhand des Faltungstheorems nachvollziehen, wonach eine Multiplikation im Ortsraum zu einer Faltung im Frequenzraum wird. Die Fourier-Transformation des zweiten Terms aus Gleichung (4.6) lässt sich demnach als Faltung der Fourier-Transformation des Multiplikators  $(c_{ph}(x,y))$  und der Fourier-Transformation des Multiplikanden  $(e^{i2\pi(f_{cx}x+f_{cy}y)})$  auffassen. Die Fourier-Transformation der komplexen Exponentialfunktion stellt eine Dirac-Funktion dar, die um die Frequenz  $(f_{cx}, f_{cy})$  verschoben wird, also

$$(\mathcal{F}(e^{i2\pi(f_{cx}x+f_{cy}y)}))(f_x, f_y) = \delta(f_x - f_{cx}, f_y - f_{cy}). \quad (4.12)$$

Die Dirac-Funktion führt in der Faltung dazu, dass die Fourier-Transformation von  $c_{ph}(x,y)$  entsprechend verschoben wird. Für den komplex konjugierten dritten Term aus Gleichung (4.6) kann analog argumentiert werden, wobei sich dieser Term in die entgegengesetzte Richtung im Frequenzraum verschiebt.

Die ersten drei Terme sind als Amplitudenmaxima in Abbildung 4.6 b) und 4.6 d) erkennbar. Bei einem Vergleich des Frequenzspektrums der „Interferenzreferenz mit Substrat“ mit dem Frequenzspektrum des Interferogramms der verdunstenden Linie wird deutlich, dass insbesondere die Amplitudenmaxima bei der Trägerfrequenz (bei einer horizontalen Frequenz von etwa  $-9 \text{ mm}^{-1}$  und  $9 \text{ mm}^{-1}$ ) Veränderungen aufweisen. Diese Amplitudenmaxima entsprechen der Fourier-Transformation des EPF. Dieses gilt es zu isolieren, um darüber die zweidimensionale Phasenverschiebung  $\Delta\varphi_s$  zu bestimmen. Hierfür werden zwei miteinander verwandte Methoden der Interferenzbildanalyse implementiert. Die zuerst vorgestellte *Fourier-Transform*-Methode basiert auf einer einfachen Filterung in der 2D-DFT. Die zweite Methode nutzt eine *Windowed-Fourier-Transformation* mit einem zusätzlichen Schwellwertverfahren im Frequenzraum zur Reduktion des Rauschens, dem sogenannten *Windowed-Fourier-Filtering*. Letztere Methode wird nachfolgend vereinfachend *Windowed-Fourier-Transform*-Methode genannt.

## Fourier-Transform-Methode

In der Fourier-Transform Methode (FT-Methode) wird der zuvor beschriebene Effekt genutzt, dass sich die einzelnen Terme der Gleichung (4.9) im Frequenzraum separieren lassen. Abbildung 4.7 a) zeigt den zentralen Bereich der 2D-DFT eines Interferogramms einer verdunstenden Linie. Es lassen sich deutlich drei Amplitudenmaxima identifizieren, die den ersten drei Termen der Gleichung (4.9) entsprechen. Aufgrund der logarithmischen Farbdarstellung der Amplitude sind zudem vertikale und horizontale Streifen erkennbar, die durch die Zentren der Amplitudenmaxima verlaufen. Hierbei handelt es sich um Randeffekte, die aus der endlichen Größe der Bildaufnahme resultieren (vgl. Kapitel 2.4). Aufgrund deutlich geringerer Amplituden lassen sich diese Randeffekte gegenüber den Haupttermen der Gleichung (4.9) vernachlässigen. Für die Separation des EPF wird ein



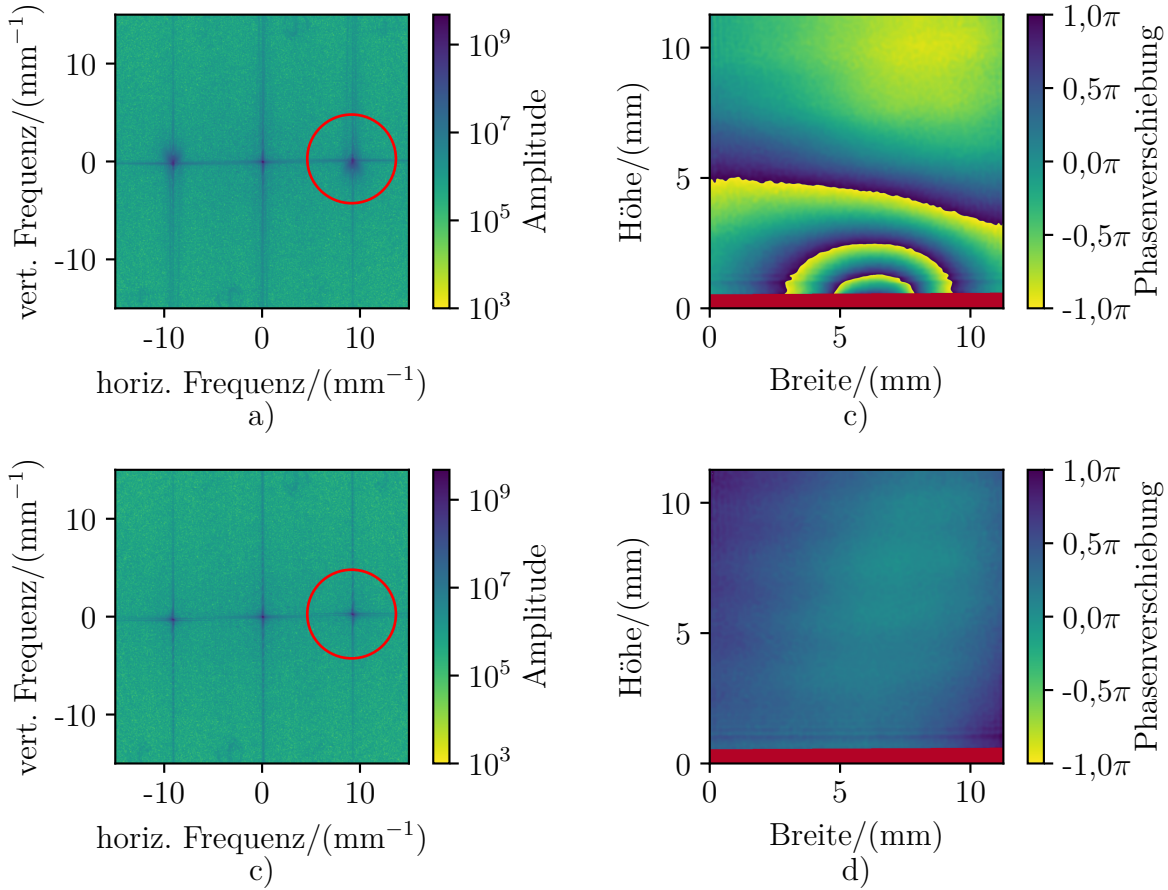


Abbildung 4.7: Die Abbildung zeigt einen Ausschnitt der 2D-DFT eines Interferogramms einer verdunstenden Linie (a). In der Fourier-Transform-Methode wird der zweite Term der Gleichung (4.9) isoliert, indem die Werte außerhalb des roten Kreises null gesetzt werden. Anschließend wird das Frequenzspektrum in den Ortsraum transformiert, die Trägerfrequenz eliminiert und die Phase des EPF berechnet. Das Ergebnis stellt die Phasenverschiebung der verdunstenden Linie (b) dar. Für die 2D-DFT der „Interferenzreferenz mit Substrat“ (c) wird analog vorgegangen und die Phasenverschiebung der Referenz erhalten (d). Die Interferogramme der verarbeiteten Aufnahmen sind in Abbildung 4.6 dargestellt.

kreisrunder Filter um das rechte Amplitudenmaximum gesetzt, das dem zweiten Term der Gleichung (4.9) entspricht. Die Werte außerhalb des in Abbildung 4.7 a) rot dargestellten Kreises werden null gesetzt, die Bereiche im Kreisinneren werden beibehalten. Anschließend wird der gesamte Frequenzbereich durch eine inverse 2D-DFT zurück in den Ortsraum transformiert. Der resultierende Term im Ortsraum entspricht dem zweiten Term der Gleichung (4.8) und beinhaltet das EPF sowie die Trägerfrequenz. Die Phase des komplexen Terms berechnet sich gemäß

$$\Delta\varphi'(x,y) = \arctan2(\operatorname{Im}\{\tilde{c}_{\text{ph}}(x,y)\}, \operatorname{Re}\{\tilde{c}_{\text{ph}}(x,y)\}), \quad (4.13)$$

wobei das komplexe Skalarfeld  $\tilde{c}_{\text{ph}}$  dem zweiten Term der Gleichung (4.9) entspricht, also

$$\tilde{c}_{\text{ph}}(x,y) = c_{\text{ph}}(x,y)e^{i2\pi(f_{\text{cx}}x+f_{\text{cy}}y)}. \quad (4.14)$$

Die  $\arctan2(y,x)$ -Funktion stellt eine Erweiterung der  $\arctan(y/x)$ -Funktion dar, wobei die Vorzeichenmehrdeutigkeit der  $\arctan$ -Funktion eliminiert wird und somit die Argumente



der Funktion auf den gesamten Winkelbereich von  $(-\pi, \pi]$  abgebildet werden. Um die durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung  $\Delta\varphi_s(x, y)$  zu erhalten, muss die durch die Trägerfrequenz verursachte Phasenverschiebung  $\Delta\varphi_c$  abgezogen werden. Da die Phase  $\Delta\varphi'$  nicht stetig ist, wird  $\Delta\varphi_c(x, y)$  durch folgende Funktion eliminiert und man erhält die durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung  $\Delta\varphi_s$

$$\Delta\varphi_s(x, y) = \arctan2(\sin(\Delta\varphi'(x, y) - \Delta\varphi_c(x, y)), \cos(\Delta\varphi'(x, y) - \Delta\varphi_c(x, y))). \quad (4.15)$$

Die Gleichung zieht die durch die Trägerfrequenz verursachte Phase von der ermittelten Phase ab und faltet das Ergebnis erneut auf den Definitionsbereich der  $\arctan2$ -Funktion. Alternativ zu der nachträglichen Elimination der Phase der Trägerfrequenz ist es ebenfalls möglich, den im Frequenzraum freigestellten Bereich zunächst in den Ursprung zu verschieben und danach mittels einer 2D-DFT in den Ortsraum zu transformieren. Aufgrund potenzieller Rundungsfehler wird jedoch die nachträgliche Elimination der Phase der Trägerfrequenz bevorzugt und im Rahmen dieser Arbeit umgesetzt.

Das Ergebnis der FT-Methode, angewandt auf das in Abbildung 4.7 a) dargestellte Interferogramm einer verdunstenden Linie, ist in Abbildung 4.7 b) dargestellt. Es zeigt deutlich die durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung. Diese ist aufgrund der Periodizität der EM-Welle auf einen Wertebereich zwischen  $-\pi$  und  $\pi$  begrenzt und weist Phasensprünge auf. Es handelt sich um eine sogenannte *Wrapped Phase*, die erst nach dem *Phase Unwrapping* (vgl. Kapitel 4.2.3) als stetiger Gangunterschied  $\Delta s$  vorliegt.

Die Abbildung 4.7 c) zeigt einen Ausschnitt der 2D-DFT der „Interferenzreferenz mit Substrat“. Für diese wird analog vorgegangen, das heißt auch hier wird die Phasenverschiebung  $\Delta\varphi_r$  bestimmt, die in diesem Fall die Abweichung der Referenzaufnahme von der als monochrom angenommenen Trägerfrequenz angibt. Insbesondere werden dadurch auch Phasenverschiebungen berücksichtigt, die aufgrund der Lichtbeugung an der Substratkante auftreten. Die Subtraktion der Phasenverschiebung der „Interferenzreferenz mit Substrat“ von der Phasenverschiebung des Interferograms der verdunstenden Linie ergibt die korrigierte Phasenverschiebung  $\Delta\varphi_{s,c}$

$$\Delta\varphi_{s,c}(x, y) = \arctan2(\sin(\Delta\varphi_s(x, y) - \Delta\varphi_r(x, y)), \cos(\Delta\varphi_s(x, y) - \Delta\varphi_r(x, y))), \quad (4.16)$$

wobei der Wertebereich der Phasenverschiebung beibehalten wird. Die korrigierte Phasenverschiebung der FT-Methode ist in Abbildung 4.9 a) dargestellt. Es folgt die Beschreibung einer zweiten Methode zur Analyse der Interferogramme, der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode sowie ein Vergleich der Ergebnisse beider Methoden.

### Windowed-Fourier-Transform-Methode

Die interferometrisch untersuchte Lösungsmittelatmosphäre ist stetig und die räumliche Änderung ist weitestgehend gering, wobei die größten Gradienten nahe der Fluidoberfläche erwartet werden. Aus diesem Grund hat ein Punkt in einem zu messenden Bildausschnitt wenig mit einem weit davon entfernten Punkt zu tun, aber er ist sehr ähnlich zu einem Punkt in seiner unmittelbaren Umgebung. Diese lokale Ähnlichkeit wird bei der Windowed-Fourier-Transform Methode (WFT-Methode) genutzt, um Rauschen zu unterdrücken (Kemao, 2013) und die Phasenverschiebung der Interferogramme zuverlässig zu bestimmen.

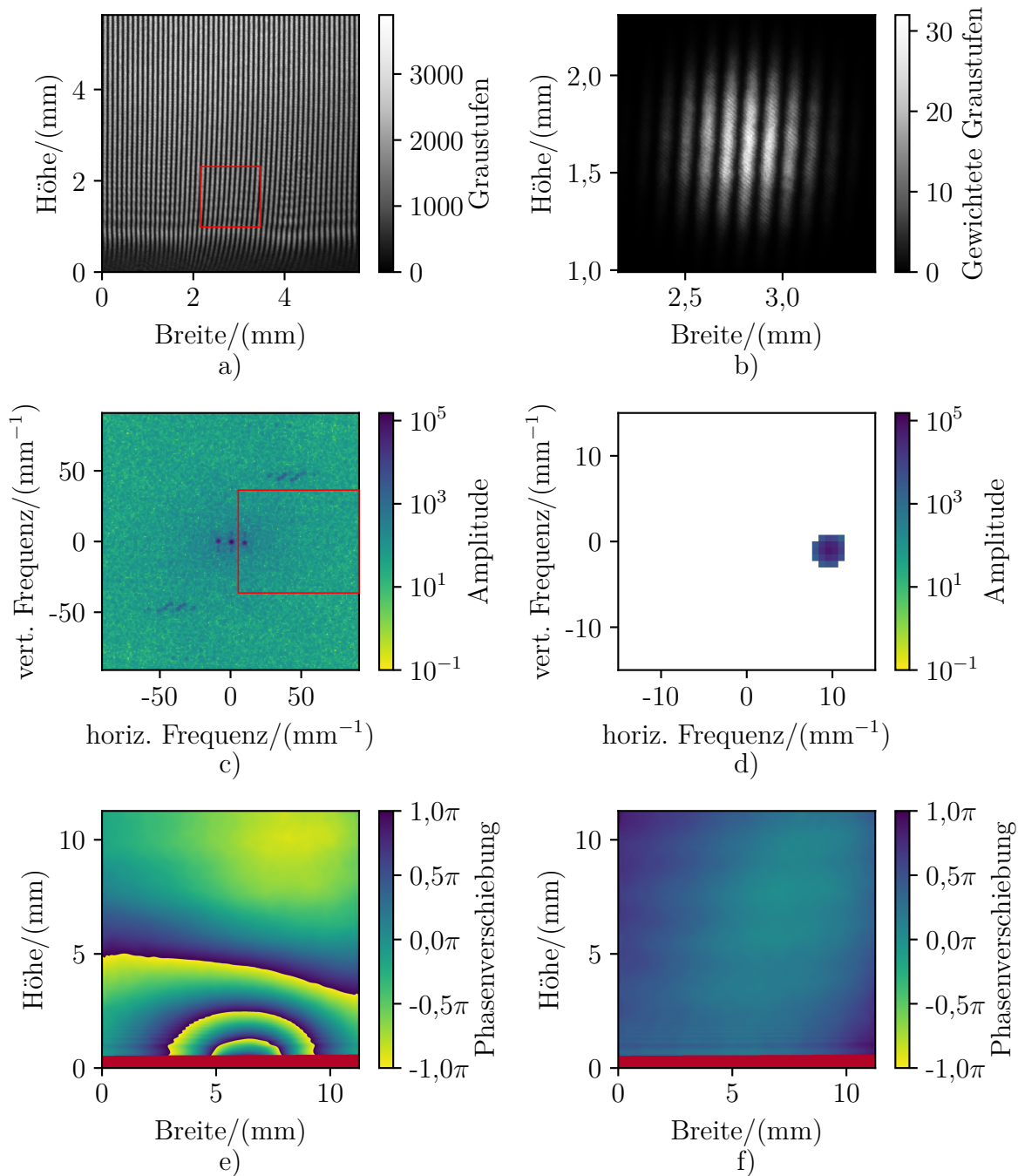


Abbildung 4.8: Die Abbildung zeigt das Vorgehen bei der Analyse eines Interferogramms gemäß der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode. Hierbei wird aus der Bildaufnahme des Interferogramms einer verdunstenden Linie (a) exemplarisch das rot markierte Fenster ausgeschnitten und der Einfluss der Ränder mittels eines Gauß-Filters reduziert (b). Die 2D-DFT des Fensters (c) wird außerhalb des roten Rahmens null gesetzt und die Hauptbeiträge innerhalb des Rahmens mittels eines Schwellwertverfahrens isoliert (d). Anschließend wird das Frequenzspektrum zurück in den Ortsraum transformiert, die Einzelbeiträge der Fenster aufsummiert und die Trägerfrequenz eliminiert. Das Ergebnis stellt die Phasenverschiebung der verdunstenden Linie (e) dar. Außerdem ist die Phasenverschiebung der „Interferenzreferenz mit Substrat“ (f) dargestellt, für die analog vorgegangen wird.

Im Gegensatz zur FT-Methode wird bei der WFT-Methode eine lokale Fourier-Transformation genutzt. Es wird eine Gabor-Transformation gewählt, das heißt es wird eine gaußsche Fensterfunktion genutzt, um die lokale Fourier-Transformation für jede Position  $(x', y')$  des Interferogramms  $I(x, y)$  zu berechnen (vgl. Gleichung 2.75)

$$(\mathcal{G}I)(x', y', f_x, f_y) = \iint_{-\infty}^{\infty} I(x, y) g_w(x - x', y - y') e^{2\pi i(f_x x + f_y y)} dx dy. \quad (4.17)$$

Die Normierung der Fensterfunktion wird so gewählt, dass deren  $L^2$ -Norm eins ergibt, also (Kema, 2008)

$$\|g_w(x, y)\|_2 = \left( \int_{-\infty}^{\infty} |g_w(x, y)|^2 dx dy \right)^{1/2} = 1. \quad (4.18)$$

Für eine diskrete Fensterfunktion wird das obige Integral durch eine Summe ersetzt und man erhält die  $l^2$  Norm. Für die zweidimensionale Gaußfunktion ergibt sich

$$g_w(x, y) = \frac{1}{\sqrt{\pi\sigma_w^2}} e^{-\frac{x^2+y^2}{2\sigma_w^2}}. \quad (4.19)$$

Die Normierung der Fensterfunktion hat Auswirkungen auf die Skalierung der Amplituden im Frequenzraum und ist daher wichtig für die Vergleichbarkeit der Ergebnisse und die nachfolgende Parametrierung des Schwellwertverfahrens.

Die in Gleichung (4.17) präsentierte kontinuierliche Gabortransformation wird in der vorliegenden Auswertungsmethode diskretisiert und mithilfe einzelner 2D-DFT umgesetzt. Das Vorgehen bei der Analyse eines Interferogramms gemäß der WFT-Methode kann exemplarisch anhand von Abbildung 4.8 nachvollzogen werden. Es wird für jedes Pixel des Interferogramms ein quadratisches Fenster aus dem Interferogramm ausgeschnitten, wobei das zu verarbeitende Pixel im Zentrum des Fensters liegt (Abbildung 4.8 a). Um den Rechenaufwand zu limitieren, wird ein endliches, quadratisches Fenster mit der Kantenlänge  $M' = N' = 6\sigma_{w,d}$  gewählt, wobei die diskrete Standardabweichung  $\sigma_{w,d}$  in der vorliegenden Arbeit 40 Pixel beträgt. Für die Pixel im Randbereich des Interferogramms wird das Fenster dem Bildrand entsprechend abgeschnitten. Die diskreten Graustufen  $I_d(m, n)$  werden mit der zweidimensionalen, diskreten Gaußfunktion  $g_{w,d}(x, y)$  multipliziert und das dadurch erhaltene Fenster gewichteter Graustufen (Abbildung 4.8 b) mittels einer 2D-DFT in den Frequenzraum transformiert (Abbildung 4.8 c). Die diskrete Gabortransformation eines einzelnen Pixels  $(m', n')$  des Interferogramms lässt sich mathematisch wie folgt beschreiben

$$(\mathcal{G}_d I_d)(m', n', f_m, f_n) = \sum_{m=m'-N'/2}^{m'+N'/2-1} \sum_{n=n'-N'/2}^{n'+N'/2-1} I_d(m, n) g_{w,d}(m - m', n - n') e^{\frac{2\pi i}{N'}(f_m m + f_n n)}. \quad (4.20)$$

Das erhaltene Spektrum ähnelt den Spektren der FT-Methode, das heißt es sind erneut drei zentrale Amplitudenmaxima sichtbar. Diese entsprechen wie zuvor den drei Termen der Gleichung (4.9). Das rechte Amplitudenmaximum, das dem zweiten Term der Gleichung (4.9) entspricht, wird zunächst isoliert, indem die Werte außerhalb des rot markierten Rahmens in Abbildung 4.8 c) null gesetzt werden. Hierdurch werden insbesondere das Amplitudenmaximum der Hintergrundintensität sowie Maxima von sekundären Interferenzen eliminiert.

Aufgrund der Fensterung ist die Änderung der Trägerfrequenz innerhalb des Fensters und damit die Bandbreite des EPF kleiner, wodurch die Maxima des zweiten und dritten Terms

aus Gleichung (4.9) stärker ausgeprägt sind. Sie lassen sich klarer von den umgebenden Frequenzen abgrenzen und ermöglichen somit das sogenannte *Windowed-Fourier-Filtering*, das ein Schwellwertverfahren im Frequenzraum darstellt und das weiße Rauschen  $I_n(x,y)$ , das über das gesamte Frequenzspektrum verteilt ist, reduziert. Die gefilterte Gabortransformation an der Position  $(x',y')$  des Interferogramms wird mit  $(\bar{\mathcal{G}}I)(x',y',f_x,f_y)$  gekennzeichnet und berechnet sich gemäß (Kemaio, 2013)

$$(\bar{\mathcal{G}}I)(x',y',f_x,f_y) = \begin{cases} (\mathcal{G}I)(x',y',f_x,f_y), & \text{falls } |(\mathcal{G}I)(x',y',f_x,f_y)| \geq thr \\ 0, & \text{falls } |(\mathcal{G}I)(x',y',f_x,f_y)| < thr \end{cases}. \quad (4.21)$$

Im *Windowed-Fourier-Filtering* wird demnach ein Schwellwert  $thr$  definiert, wobei die Amplitudenwerte unterhalb des Schwellwerts null gesetzt und die Amplitudenwerte über dem Schwellwert beibehalten werden. Das gefilterte Frequenzspektrum eines Fensters ist in Abbildung 4.8 d) dargestellt. Für eine effiziente Rauschunterdrückung bei gleichzeitiger Beibehaltung der informationstragenden Frequenzen ist eine geeignete Wahl für den Schwellwert entscheidend. Gemäß Kemaio (2008) ist der maximale Betrag der Amplitude eines intrinsischen EPF für ein zweidimensionales gaußsches Fenster der gewählten Normierung etwa  $2\sqrt{\pi}\sigma_{w,d}$ . Ein intrinsisches EPF hat im Ortsraum eine Amplitude von eins und beinhaltet kein Rauschen. Gemäß Gleichung (4.10) hat das EPF des Trägerfrequenzmaximums eine Amplitude von  $\frac{1}{2}b(x,y)$ , wobei  $b(x,y)$  die Amplitude der Interferenzstreifen des Interferogramms darstellt. Die maximale Amplitude der Interferenzstreifen liegt für die vorliegenden Interferogramme etwa bei 1400 Graustufen. Dementsprechend ist bei einer Standardabweichung von  $\sigma_{w,d} = 40$  Pixel etwa eine maximale Amplitude von  $2\sqrt{\pi} \cdot 40 \cdot 1400/2 \approx 1 \cdot 10^5$  zu erwarten. Dies deckt sich mit den Amplitudenwerten in Abbildung 4.8 d). Der maximale Amplitudenwert kann sich aufgrund diverser Effekte von diesem Schätzwert unterscheiden, weshalb im Allgemeinen der Schwellwert  $thr$  viel geringer gewählt wird (ebd.). Für den vorliegenden Fall wurde ein Schwellwert von  $thr = 2000$  gewählt. In Abschnitt 4.3.2 wird der Einfluss des Schwellwerts untersucht und gezeigt, dass ein großer Bereich des Schwellwerts geeignet ist und dadurch die Wahl desselben vereinfacht wird.

Nachdem das rechte Amplitudenmaximum isoliert wurde, wird das Frequenzspektrum zurück in den Ortsraum transformiert. Die Rücktransformation des gefilterten Frequenzspektrums ergibt den zweiten Term der Gleichung (4.9) und beinhaltet das EPF sowie die komplexe Exponentialfunktion der Trägerfrequenz

$$\tilde{c}_{ph}(x,y) = \iiint\limits_{-\infty}^{\infty} (\bar{\mathcal{G}}I)(x',y',f_x,f_y)g_w(x-x',y-y')e^{-2\pi i(f_x x + f_y y)} df_x df_y dx' dy'. \quad (4.22)$$

Da die Bildaufnahmen eine Menge diskreter Graustufenwerte mit einer endlichen räumlichen Abtastrate darstellen, wird die obige Gleichung in eine diskrete Formulierung überführt. Hierzu werden die Integrale durch endliche Summen ersetzt, die diskrete Gabortransformation wird analog zu Gleichung (4.21) gefiltert und die Exponentialfunktion diskretisiert

$$\tilde{c}_{ph,d}(m,n) = \frac{1}{N^2} \sum_{m'=0}^{N-1} \sum_{n'=0}^{N-1} \sum_{f_m=0}^{N'-1} \sum_{f_n=0}^{N'-1} (\bar{\mathcal{G}}_d I_d)(m',n',f_m,f_n)g_{w,d}(m-m',n-n')e^{-\frac{2\pi i}{N'}(f_m m + f_n n)}. \quad (4.23)$$

Hierbei wird die Anzahl der Pixelreihen beziehungsweise Pixelspalten der quadratischen Bildaufnahme mit  $N$  und die des ausgeschnittenen Fensters mit  $N'$  bezeichnet. Die obige

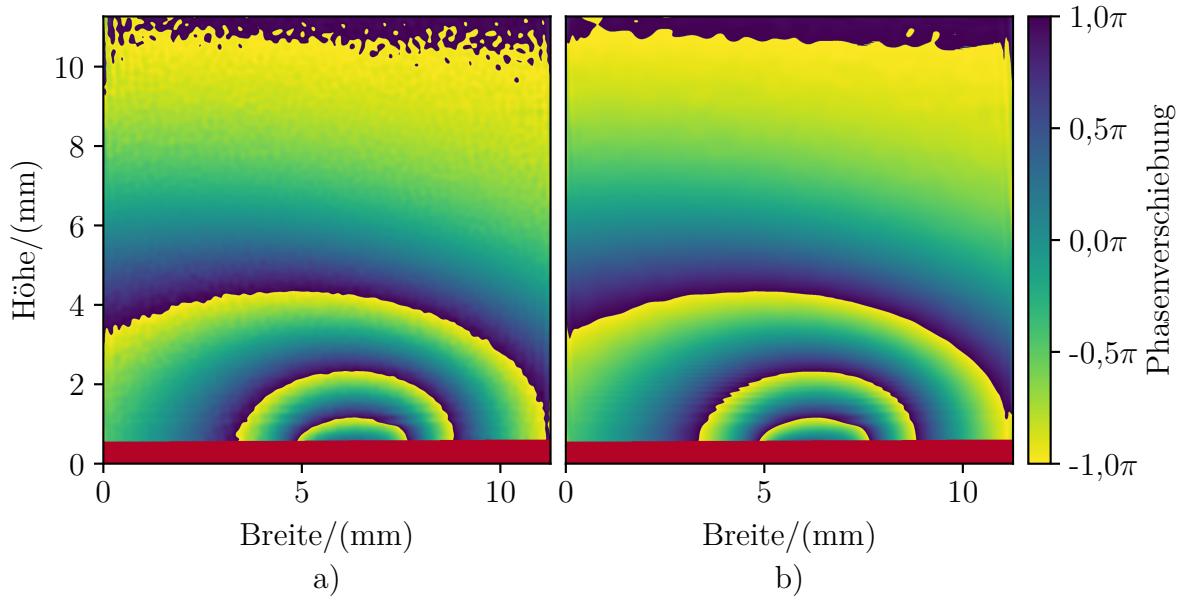


Abbildung 4.9: Dargestellt werden die Phasenverschiebungsverteilungen eines Interferogramms einer verdunstenden Linie (vgl. Abbildung 4.6 c). Das Ergebnis der *Fourier-Transform-Methode* ist links dargestellt (a) und das Ergebnis der *Windowed-Fourier-Transform-Methode* ist rechts dargestellt (b).

Gleichung lässt sich mithilfe der 2D-DFT effizient implementieren. Hierfür wird zunächst für jedes Pixel ( $m', n'$ ) die inverse, diskrete, zweidimensionale Fouriertransformation des gefilterten Frequenzspektrums berechnet. Anschließend wird das Ergebnis im Ortsraum mit der gaußschen Fensterfunktion multipliziert und die Matrizen aller Pixel unter Berücksichtigung der jeweiligen Pixelposition zu einer Gesamtmatrix addiert. Diese Gesamtmatrix entspricht  $\tilde{c}_{\text{ph,d}}(m, n)$ , der diskreten Variante der komplexen Matrix  $\tilde{c}_{\text{ph}}(x, y)$  (vgl. Gleichung 4.14).

Für ein Interferogramm mit 4,2 Mpx müssen über vier Millionen Hin- und Rücktransformationen durchgeführt werden. Trotz einer effizienten Umsetzung der einzelnen Transformation mittels des *Fast-Fourier-Transform-Algorithmus* der Python Programmbibliothek *numpy* (Harris et al., 2020) und der parallelen Nutzung der zur Verfügung stehenden Prozessorkerne des Computers, ist der Zeitaufwand hierfür sehr groß. Da sich die einzelnen Fenster der Gabortransformation stark überschneiden, sind die in Gleichung (4.23) aufaddierten, komplexen Matrizen beziehungsweise deren Phaseninformation teilweise redundant und zu vernachlässigen. Um Rechenzeit einzusparen, wurde für die ersten beiden Summen in Gleichung (4.23) eine Abtastrate  $n_a$  eingeführt, das heißt es wird nur noch jeder  $n_a$ -te Summand der Summe berücksichtigt. Dies reduziert den Rechenaufwand erheblich, kann jedoch je nach Wahl der Abtastrate zu einem signifikanten Informationsverlust beziehungsweise zu einer Verfälschung der resultierenden Phasenverschiebungsverteilung führen. Der Einfluss der Abtastrate  $n_a$  auf die Phasenverschiebungsverteilung wird in Kapitel 4.3.1 diskutiert.

Die durch den Lösungsmitteldampf verursachte Phasenverschiebung lässt sich bestimmen, indem die Phase der komplexen Matrix  $\tilde{c}_{\text{ph,d}}$  analog zu Gleichung (4.13) berechnet wird und Gleichung (4.15) genutzt wird, um die Phase der Trägerfrequenz zu eliminieren. Das

Ergebnis ist in Abbildung 4.8 e) dargestellt. Wie bereits in der FT-Methode wird die „Interferenzreferenz mit Substrat“ analog ausgewertet, das heißt auch hier wird mittels der lokalen Fourier-Transformation und dem *Windowed-Fourier-Filtering* die Phasenverschiebung bestimmt (Abbildung 4.8 f). Die Phasenverschiebung der Referenz wird genutzt, um die korrigierte Phasenverschiebung gemäß Gleichung (4.16) zu berechnen. Die korrigierte Phasenverschiebung der WFT-Methode ist in Abbildung 4.9 b) der korrigierten Phasenverschiebung der *Fourier-Transform*-Methode gegenübergestellt. Im Folgenden wird, sofern nicht anders angegeben, stets die korrigierte Phasenverschiebung genutzt, wobei auf den Zusatz „korrigiert“ verzichtet wird.

Bei einem Vergleich der beiden Phasenverschiebungsverteilungen in Abbildung 4.9 wird deutlich, dass beide Methoden eine sehr ähnliche Phasenverschiebung ergeben. Es eignen sich prinzipiell beide Methoden für die Auswertung der vorliegenden Interferogramme. Der Hauptvorteil der FT-Methode besteht in dem geringen Rechenaufwand. Wird der Radius der Filterung im Frequenzraum entsprechend gewählt, so wird in dieser Methode die Phasenverschiebung der Interferogramme zuverlässig ermittelt. Die Phasenverschiebungsverteilungen der WFT-Methode unterscheiden sich insbesondere hinsichtlich des geringeren Rauschens in der Phasenverschiebungsverteilung. Durch den gleichmäßigeren Verlauf der Linien der Phasensprünge wird das folgende *Phase Unwrapping* erheblich vereinfacht. Zu beachten ist, dass die Reduktion des Rauschens in der WFT-Methode die zugrunde liegende Phasenverschiebungsverteilung nicht verfälscht. Dies wird insbesondere anhand der Parameterstudie in Kapitel 4.3.2 gezeigt. Aufgrund der Vorteile im *Phase Unwrapping* wird in der Auswertung der Interferogramme standardmäßig die WFT-Methode genutzt.

Die ermittelten Phasenverschiebungsverteilungen erlauben einen qualitativen Vergleich der Lösungsmitteldampfverteilung für die einzelnen Messungen (vgl. Abbildung 4.14). Dabei gilt, dass die Phasenverschiebungsverteilungen längerer Linien im Allgemeinen mehr Phasensprünge aufweisen. Die Länge der von der Laserstrahlung durchlaufenen Lösungsmitteldampfverteilung wächst mit der Länge der gedruckten Linie, sodass es zu einem höheren Gangunterschied zwischen der Objekt- und der Referenzwelle kommt. Um quantitative Aussagen zu ermöglichen und eine zweidimensionale Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich der Linie zu erhalten, folgen der Analyse der Interferogramme zwei weitere Auswertungsschritte. Im *Phase Unwrapping* werden zunächst die Phasensprünge der Phasenverschiebungsverteilungen entfernt und ein stetiger Gangunterschied  $\Delta s$  ermittelt. Daraufhin werden die Ergebnisse mehrerer Linien unterschiedlicher Länge kombiniert und daraus die gewünschte zweidimensionale Konzentrationsverteilung berechnet.

### 4.2.3 Phase Unwrapping

Aufgrund der Wellennatur des Lichts ist die Phasenverschiebung mehrdeutig und nur in einem Wertebereich zwischen  $-\pi$  und  $+\pi$  zuzuordnen. Die dadurch auftretenden Phasensprünge in den Phasenverschiebungsverteilungen werden in dem sogenannten *Phase Unwrapping* entfernt, wobei die unstetige Phasenverschiebungsverteilung in einen stetigen Gangunterschied  $\Delta s$  überführt wird. Es gibt eine Vielzahl unterschiedlicher Algorithmen,

worüber Ghiglia und Pritt (1998) und Zappa und Busca (2008) eine Übersicht geben.

In der vorliegenden Arbeit werden sowohl räumliche als auch zeitliche *Phase Unwrapping*-Algorithmen eingesetzt. Zunächst werden im räumlichen *Phase Unwrapping* die Phasensprünge in den Phasenverschiebungsverteilungen der Einzelaufnahmen entfernt. Anschließend werden im zeitlichen *Phase Unwrapping* alle Aufnahmen des gleichen Versuchs verglichen, um die zeitliche Stetigkeit der einzelnen Phasenverschiebungsverteilungen zu gewährleisten. Beim räumlichen *Phase Unwrapping* werden die Algorithmen von Herráez et al. (2002) und der Linien-Algorithmus implementiert. Letzterer wurde im Rahmen der vom Autor betreuten Masterarbeit von Florian Narrog (Narrog, 2020) entwickelt und in Braig et al. (2021) veröffentlicht. Die beiden Algorithmen werden im Folgenden beschrieben, wobei der Fokus auf dem Linien-Algorithmus liegt. Anschließend wird das zeitliche *Phase Unwrapping* dargestellt.

### Herráez-Algorithmus

Bei dem *Phase Unwrapping*-Algorithmus von Herráez et al. (2002) handelt es sich um einen qualitätsgeführten Pfad-Algorithmus. Dabei wird für jedes Pixel einer zweidimensionalen Matrix ein Reliabilitätswert berechnet und anhand dessen ein Integrationspfad für die Beseitigung der Phasensprünge geplant. Im Allgemeinen werden die Pixel mit der höchsten Qualität beziehungsweise mit den höchsten Reliabilitätswerten zuerst und die Pixel niedrigster Qualität zuletzt verarbeitet. Auf diese Weise wird eine Fehlerfortpflanzung entlang des Integrationspfades weitestgehend vermieden.

Für die Bestimmung der Reliabilität wird zunächst die Gesamtdifferenz zweiter Ordnung  $D_H$  eines Pixels  $(m, n)$  berechnet. Diese setzt sich aus einer horizontalen ( $D_1$ ), einer vertikalen ( $D_2$ ) und zwei diagonalen Differenzen ( $D_3, D_4$ ) zweiter Ordnung zusammen

$$D_H = \sqrt{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2 + D_4^2}. \quad (4.24)$$

Die einzelnen Differenzen berechnen sich dabei gemäß

$$D_1 = \tau(\varphi_{\text{ph}}(m-1, n) - \varphi_{\text{ph}}(m, n)) - \tau(\varphi_{\text{ph}}(m, n) - \varphi_{\text{ph}}(m+1, n)), \quad (4.25)$$

$$D_2 = \tau(\varphi_{\text{ph}}(m, n-1) - \varphi_{\text{ph}}(m, n)) - \tau(\varphi_{\text{ph}}(m, n) - \varphi_{\text{ph}}(m, n+1)), \quad (4.26)$$

$$D_3 = \tau(\varphi_{\text{ph}}(m-1, n-1) - \varphi_{\text{ph}}(m, n)) - \tau(\varphi_{\text{ph}}(m, n) - \varphi_{\text{ph}}(m+1, n+1)), \quad (4.27)$$

$$D_4 = \tau(\varphi_{\text{ph}}(m-1, n+1) - \varphi_{\text{ph}}(m, n)) - \tau(\varphi_{\text{ph}}(m, n) - \varphi_{\text{ph}}(m+1, n-1)), \quad (4.28)$$

wobei  $\tau(x) = \text{sgn}(x) \cdot (|x| \bmod \pi)$  (Kasim, 2017). Die Phasenwerte  $\varphi_{\text{ph}}$  der horizontal, vertikal oder diagonal benachbarten Pixel werden jeweils mit dem zentralen Pixel  $(m, n)$  verglichen und die  $\tau$ -Funktion entfernt den Einfluss von Phasensprüngen zwischen benachbarten Pixeln. Die Distanzwerte für die Randpixel, für die keine Distanz berechnet werden kann, werden auf unendlich gesetzt. Der Reliabilitätswert  $R_H$  entspricht dem Kehrwert der Gesamtdifferenz zweiter Ordnung  $D_H$ , also

$$R_H = \frac{1}{D_H}. \quad (4.29)$$

Es wird nun für jede horizontale und vertikale Grenze zwischen zwei Pixeln ein Reliabilitätswert berechnet, der der Summe der Reliabilitätswerte der beteiligten Pixel entspricht. Für

eine Matrix mit  $10 \text{ px} \times 10 \text{ px}$  werden beispielsweise 90 horizontale und 90 vertikale Grenzen definiert und deren Reliabilitätswerte in absteigender Reihenfolge vom größten zum niedrigsten Wert sortiert. Ein großer Reliabilitätswert entspricht einer kleinen Änderung der Phasenverschiebungswerte benachbarter Pixel, ein kleiner Reliabilitätswert entspricht einer großen Änderung. Die Grenze mit der höchsten Reliabilität wird zunächst verarbeitet, indem ein potenzieller Phasensprung zwischen den benachbarten Pixeln entfernt wird und die beiden Pixel einer individuellen Gruppe zugewiesen werden. Daraufhin wird die Grenze mit der zweithöchsten Reliabilität verarbeitet, wobei analog vorgegangen wird. Wird die Grenze eines bereits bearbeiteten und dadurch einer Gruppe zugewiesenen Pixels verarbeitet, so wird der potenzielle Phasensprung gegenüber der gesamten Gruppe entfernt und die entsprechenden Gruppen vereinigt. Dieses Vorgehen wird fortgesetzt bis alle Grenzen verarbeitet wurden, wobei die Grenzen niedriger Reliabilität zuletzt verarbeitet werden. Hierdurch werden Bereiche mit hochfrequenten Störungen zuletzt verarbeitet und mögliche, daraus resultierende Fehler auf einen kleinen Teilbereich begrenzt. Herráez et al. (2002) gibt Details zu dem beschriebenen Vorgehen sowie eine übersichtliche Visualisierung der Einzelschritte des *Phase Unwrapping*-Algorithmus.

Für die Verarbeitung einer Phasenverschiebungsverteilung mit einer Höhe und Breite von jeweils 2048 px benötigt der Herráez-Algorithmus etwa 42 s. Die Berechnungsdauer des Algorithmus ist im Vergleich zu anderen *Phase Unwrapping*-Algorithmen gering (Heshmat, Tomioka und Nishiyama, 2014). Für die Auswertung der geplanten 15 000 Bildaufnahmen ist jedoch eine schnellere Verarbeitung nötig. Aus diesem Grund wird ein neuer Linien-Algorithmus entwickelt, der auf die Verarbeitung der zweidimensionalen Phasenverschiebungsverteilungen der Ergebnisse der FT-Methode und WFT-Methode spezialisiert ist und dadurch zu einer erheblichen Zeitersparnis führt. Dieser Linien-Algorithmus wird im folgenden Abschnitt vorgestellt.

### **Linien-Algorithmus**

Bei den Interferogrammen verdunstender Linien treten zahlreiche Störungen auf, die zum Beispiel aus Substratreflexionen, Lichtbeugungseffekten oder aus Verunreinigungen der optischen Komponenten des Versuchsaufbaus resultieren. Die Störungen dieser Interferogramme lassen sich durch die FT-Methode und WFT-Methode nicht vollumfänglich beseitigen, sodass die ermittelten Phasenverschiebungsverteilungen teilweise diese Störungen beinhalten. Während das Rauschen der Interferogramme und Beugungsringe an Verunreinigungen an optischen Komponenten zuverlässig unterdrückt werden, ist beispielsweise die durch die Substratkante verursachte Lichtbeugung durch horizontale Streifen in den Phasenverschiebungsverteilungen in Abbildung 4.9 erkennbar. Außerdem treten Randeffekte auf, die sich durch stärker variierende Phasensprünge an den Rändern der Bildaufnahme erkennen lassen. Dennoch lassen sich die Phasensprünge insbesondere bei der Phasenverschiebungsverteilung der WFT-Methode in der gesamten Bildaufnahme deutlich lokalisieren. Der von Narrog (2020) neu entwickelte Linien-Algorithmus nutzt diesen Sachverhalt und basiert auf einer Lokalisierung der Phasensprünge mithilfe eines zweidimensionalen Kantendetektors. Die ermittelten Kanten grenzen Flächen voneinander ab und die Phasensprünge zwischen benachbarten Flächen werden beseitigt, indem alle Werte in einer der beiden Flächen um  $2\pi$  erhöht oder verringert werden. Abbildung 4.10 veranschaulicht den Programmablauf des Linien-Algorithmus. Im Folgenden wird das



Linien-Algorithmus

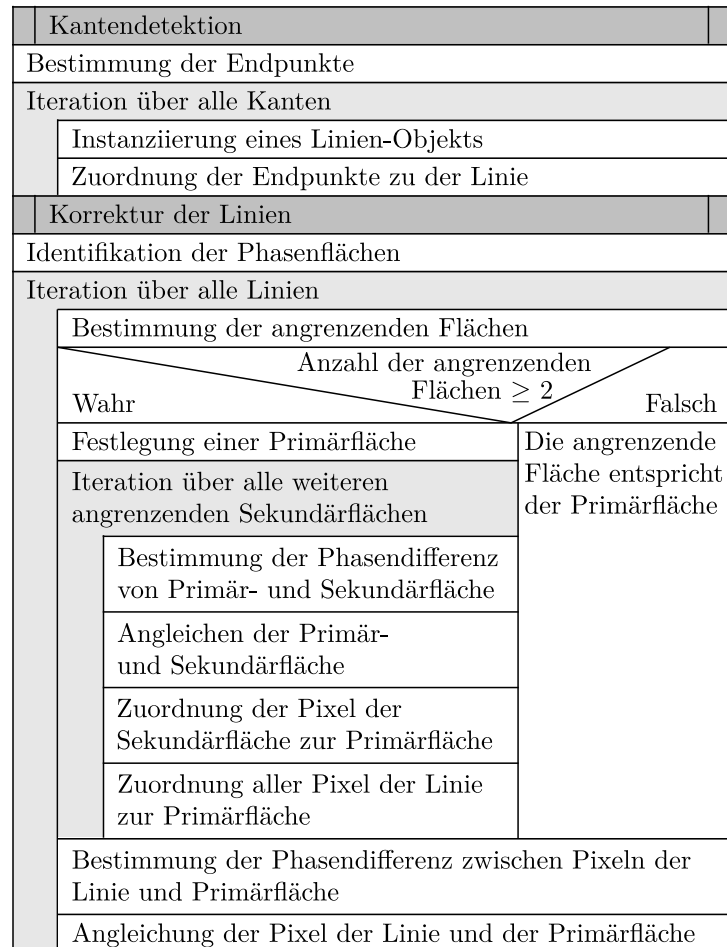


Abbildung 4.10: Die Abbildung stellt den Programmablauf des Linien-Algorithmus als Nassi-Shneiderman-Diagramm dar. Die weißen Strukturblöcke repräsentieren einfache Anweisungen, die hellgrauen Strukturblöcke Schleifen und die dunkelgrauen Strukturblöcke Blockanweisungen. (nach Narrog, 2020)

Vorgehen des Linien-Algorithmus beispielhaft anhand einer computergenerierten Phasenverschiebungsverteilung präsentiert. Anschließend wird der Algorithmus exemplarisch auf die Phasenverschiebungsverteilung in Abbildung 4.9 b) angewandt.

Die computergenerierte Phasenverschiebungsverteilung ist in Abbildung 4.11 a) dargestellt. Auf das Hinzufügen von Rauschen wurde verzichtet, jedoch wurden Bildfehler eingefügt, die Fehler der realen Phasenverschiebungsverteilungen repräsentieren. Die Kanten der Phasensprünge wurden an mehreren Stellen verwischt, kleine Bereiche wurden mit abweichenden, konstanten Werten ersetzt und ein künstliches Substrat wurde im unteren Bereich der Verteilung eingefügt. In realen Phasenverschiebungsverteilungen treten teilweise ähnliche Bildfehler auf, sodass der Linien-Algorithmus hierauf optimiert wird.

In dem ersten Schritt des Linien-Algorithmus werden die Kanten der Phasensprünge detektiert. Hierfür wird ein einfacher Gradientenfilter, der Roberts-Operator, genutzt. Er besteht aus den Faltungsmasken  $F_{R,1}$  und  $F_{R,2}$ , die mit den Phasenwerten der Pixel  $\varphi_{ph}$  gefaltet werden und dadurch die diagonalen Komponenten  $G_1$  und  $G_2$  des Gradienten

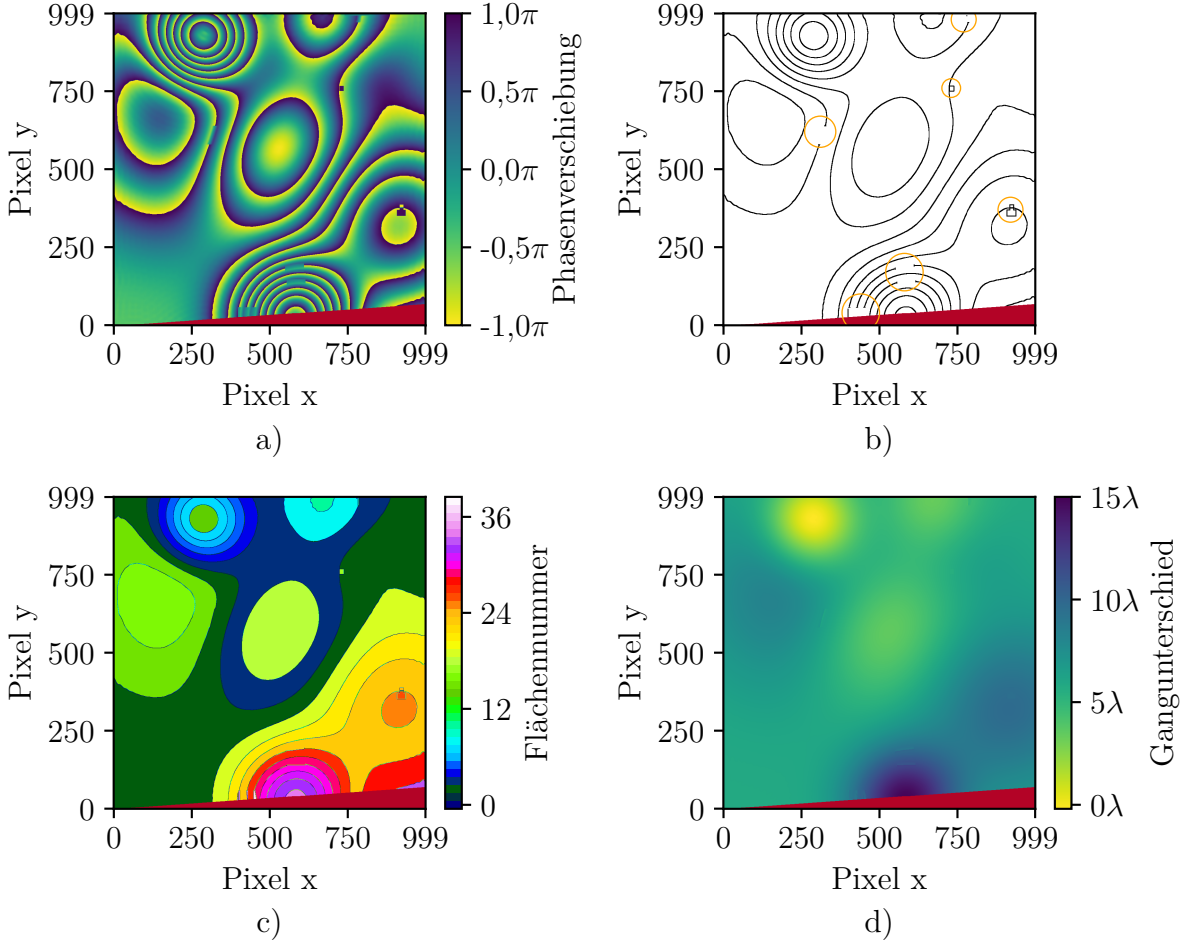


Abbildung 4.11: Die Abbildung zeigt die Zwischenschritte des Linien-Algorithmus, angewandt auf eine computergenerierte, quadratische Phasenverschiebungsverteilung mit der Kantenlänge 1000 px (a). Zunächst werden die Kanten der Phasenversprünge detektiert (b). Die eingebrachten Bildfehler der Phasenverschiebungsverteilung sind durch orangefarbene Kreise markiert. Die unterbrochenen Linien werden geschlossen und die einzelnen, sich abgrenzenden Flächen durchnummeriert (c). Zuletzt werden die Phasenversprünge zwischen benachbarten Flächen beseitigt, um dadurch die stetige Verteilung des Gangunterschieds zu erhalten (d). (nach Braig et al., 2021)

ergeben (Burger und Burge, 2015)

$$G_1 = \varphi_{\text{ph}} * F_{R,1}, \quad G_2 = \varphi_{\text{ph}} * F_{R,2}, \quad (4.30)$$

$$\text{wobei } F_{R,1} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad \text{und} \quad F_{R,2} = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{bmatrix}. \quad (4.31)$$

Die Kantenstärke  $G_R$  entspricht der Quadratwurzel der Summe der Quadrate der beiden Filterantworten (ebd.)

$$G_R = \sqrt{G_1^2 + G_2^2}. \quad (4.32)$$

Die Kanten der Phasenversprünge lassen sich nun über ein Schwellwertverfahren lokalisieren. Die Pixel, deren Werte der Kantenstärke kleiner als  $\pi$  sind, werden null gesetzt, während die Pixel mit Werten größer als  $\pi$  eins gesetzt werden. Die ermittelten Kanten sind in Abbildung

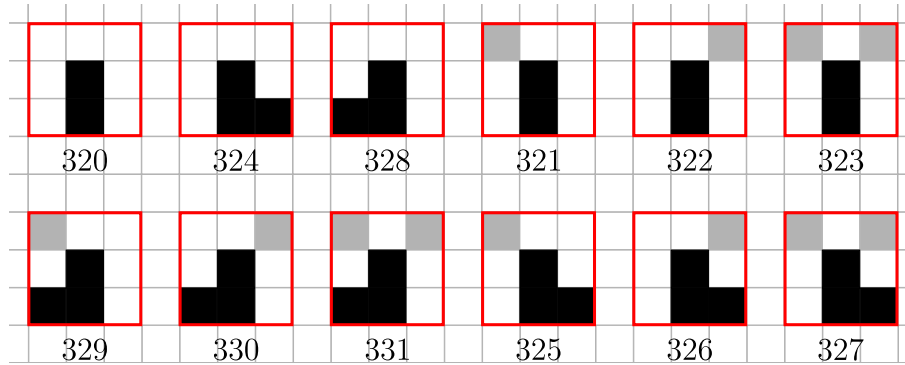


Abbildung 4.12: Gezeigt werden 12 der insgesamt 48 möglichen Varianten, die einem Endpunkt der schwarzen Linie im mittleren Pixel entsprechen. Die übrigen 36 Varianten ergeben sich durch die Rotation der gezeigten Varianten um den mittleren Pixel. Eine Linie verläuft gemäß Definition ausschließlich horizontal und vertikal, nicht diagonal. Die grauen Pixel stellen Pixel benachbarter Linien dar. Die Werte unterhalb der Varianten entsprechen dem Wert, der sich bei der Faltung der jeweiligen Variante mit der Faltungsmaske  $F_E$  ergibt. (nach Narrog, 2020)

4.11 b) dargestellt. Darin werden die Bereiche der Bildfehler, die in die computergenerierte Phasenverschiebungsverteilung eingebracht wurden, durch orangefarbene Kreise markiert. Durch die Bildfehler sind die Kanten teilweise unterbrochen oder es werden zusätzliche Kanten erkannt.

Um die Elimination der Phasensprünge zu ermöglichen, müssen die detektierten Kanten korrigiert werden. Hierfür werden zunächst die Endpunkte der Kanten bestimmt, indem das binäre Ergebnis der Kantendetektion mit der Faltungsmaske  $F_E$  gefaltet wird (Narrog, 2020)

$$F_E = \begin{bmatrix} 2^0 & 2^4 & 2^1 \\ 2^7 & 2^8 & 2^5 \\ 2^3 & 2^6 & 2^2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 16 & 2 \\ 128 & 256 & 32 \\ 8 & 64 & 4 \end{bmatrix}. \quad (4.33)$$

Ein Pixel und dessen horizontale, vertikale und diagonale Nachbarnpixel stellen eine binäre, quadratische Matrix mit neun Einträgen dar. Diese Matrix kann in insgesamt  $2^9 = 512$  unterschiedlichen Varianten vorliegen. Die Faltungsmaske  $F_E$  weist jeder Variante einen eindeutigen Wert zu. Bestimmt man nun die Werte jener Varianten, die einem Endpunkt in dem zentralen Pixel entsprechen, so lassen sich die Endpunkte ermitteln. Es wird festgelegt, dass die Pixel einer Linie horizontal und vertikal, jedoch nicht diagonal, verbunden sein können. Damit ergeben sich insgesamt 48 Varianten, wovon 12 Varianten und deren durch die Faltung zugewiesenen Werte in Abbildung 4.12 dargestellt werden. Die restlichen 36 Varianten ergeben sich durch die Rotation der gezeigten Varianten um den mittleren Pixel. Ein Endpunkt liegt genau in den Pixeln vor, in denen das Ergebnis der Faltung des binären Kantenbildes mit der Faltungsmaske  $F_E$  einen der 48 Werte der 48 Varianten annimmt.

Mithilfe der zuvor bestimmten Kanten, können die Kantenpixel separaten, durchgehenden Linien zugeordnet werden. Außerdem werden die bestimmten Endpunkte den Linien zugeordnet, die Anzahl der an der Linie beteiligten Pixel bestimmt und die Linien durchnummeriert. Die gesammelten Informationen werden anschließend genutzt, um fehlerhafte Linien zu korrigieren. Liegt ein Endpunkt in der Bildmitte, das heißt berührt er weder

den Rand des Bildes noch die Substratkante, so ist der Endpunkt Teil einer fehlerhaften Linie und wird einer Liste offener Endpunkte hinzugefügt. Nachfolgend wird jeder offene Endpunkt dieser Liste korrigiert, indem entweder zwei offene Endpunkte verbunden werden oder ein offener Endpunkt mit dem Bildrand oder der Substratkante verbunden wird. Ist keine der Korrekturmöglichkeiten plausibel, so wird die Linie gelöscht und der Nutzer des Algorithmus gewarnt.

Für die Ermittlung möglicher Verbindungen zweier Endpunkte werden die nächsten Endpunkte in der Umgebung eines zu korrigierenden Endpunkts gesucht und deren Distanz zu dem zu korrigierenden Endpunkt ermittelt. Endpunkte, deren Distanz die Distanz des zu korrigierenden Endpunktes zum Bildrand oder der Substratkante übersteigen, werden nicht berücksichtigt. Um den Rechenaufwand zu beschränken, kann der Nutzer über einen Parameter des Algorithmus die maximale Anzahl an nächsten Endpunkten festlegen, die für eine Verbindung in Betracht gezogen werden. Außerdem wird über einen weiteren Parameter die maximale Distanz für eine Verbindung zwischen zwei offenen Endpunkten begrenzt. In der vorliegenden Arbeit werden die 12 nächsten Endpunkte berücksichtigt und eine maximale Korrekturdistanz von 90 px festgelegt.

Anschließend werden die möglichen Verbindungen zwischen dem zu korrigierenden Endpunkt und den nächsten Endpunkten in größer werdender Distanz auf Plausibilität geprüft. Falls eine plausible Verbindung gefunden wird, werden die entsprechenden offenen Endpunkte durch eine gerade Linie verbunden und alle weiteren möglichen Verbindungen verworfen. Eine Verbindung gilt dabei als plausibel, falls die gerade Verbindung der Endpunkte keine andere Linie kreuzt und der Phasensprung quer zu den beteiligten Linien das gleiche Vorzeichen besitzt. Sollte keine plausible Verbindung zu dem nächsten offenen Endpunkten gefunden werden, so wird versucht den zu korrigierenden Endpunkt mit dem Rand oder der Substratkante zu verbinden. Sofern die gerade Verbindung zwischen dem nächsten Punkt des Bildrandes oder der Substratkante zu dem zu korrigierenden Endpunkt keine andere Linie kreuzt und unterhalb der maximalen Korrekturdistanz liegt, werden die Punkte verbunden. Andernfalls wird eine gerade Verbindung zum zweitnächsten offenen Endpunkt geprüft. Dieses Verfahren wird fortgesetzt bis eine plausible Verbindung gefunden wird oder bis die maximale Korrekturdistanz überschritten wird. In letzterem Fall kann der Endpunkt nicht korrigiert werden. Die zugehörige Linie wird gelöscht und der Nutzer des Algorithmus gewarnt. In diesem Fall gilt es das Resultat des *Phase Unwrappings* kritisch zu prüfen und gegebenenfalls die Parameter der WFT-Methode und des Linien-Algorithmus anzupassen.

Nachdem die Linien korrigiert wurden, sind sie geschlossen und trennen einzelne Phasenflächen voneinander ab. Die Phasenflächen werden identifiziert und durchnummeriert. Für die computergenerierte Phasenverschiebungsverteilung werden insgesamt 39 Flächen identifiziert und in Abbildung 4.11 c) farblich gekennzeichnet. Die Phasensprünge treten an den zuvor bestimmten Linien zwischen den Phasenflächen auf. Für eine zufällig gewählte erste Linie werden die benachbarten Flächen bestimmt. Im Normalfall grenzt eine Linie an zwei Phasenflächen, jedoch kann eine Linie auch an eine oder mehrere Flächen angrenzen. Letzteres tritt insbesondere bei verrauschten Phasenverschiebungsverteilungen auf, wobei eine Linie in Schleifen mehrere Flächen einschließen kann. Um den Phasensprung zwischen benachbarten Phasenflächen zu entfernen, wird für alle an eine Linie angrenzenden Flächen ein repräsentatives Pixel nahe dem Phasensprung ausgewählt. Die repräsentativen

Pixel in der Nähe des Phasensprungs weisen Werte knapp über  $-\pi$  oder knapp unter  $+\pi$ , beziehungsweise ein Vielfaches davon auf.

Anschließend wird eine primäre und sekundäre Fläche festgelegt und der Wert des repräsentativen Pixels der sekundären Fläche von dem Wert des repräsentativen Pixels der primären Fläche subtrahiert. Die Differenz liegt im Allgemeinen knapp unter  $+2\pi$  oder knapp über  $-2\pi$  beziehungsweise einem Vielfachen davon. Diese Differenz wird auf Vielfache von  $2\pi$  gerundet und der resultierende Wert auf alle Werte der zweiten Fläche addiert. Anschließend werden die Pixel der sekundären Fläche der primären Fläche zugewiesen. Dieses Vorgehen wird für alle angrenzenden Flächen der Linie wiederholt. Zuletzt werden die Werte der Linie, deren Pixel keiner der angrenzenden Flächen angehören, in einem ähnlichen Verfahren korrigiert. Es wird dabei für jedes Pixel der Linie eine Phasendifferenz gebildet, indem der Wert des Pixels von dem Wert des repräsentativen Pixels der primären Fläche subtrahiert wird. Anschließend wird die Differenz auf Vielfache von  $2\pi$  gerundet und auf den Wert des jeweiligen Pixels addiert. Daraufhin werden auch die Pixel der Linie der primären Fläche zugeordnet.

Wird dieses Vorgehen für alle Linien der Phasenverschiebungsverteilung fortgesetzt, so erhält man eine stetige Phasenverschiebungsverteilung ohne Phasensprünge. Um eine Vergleichbarkeit der Verteilungen unabhängig von der zuerst ausgewählten Linie zu gewährleisten, wird die ermittelte Phasenverschiebungsverteilung um ein Vielfaches von  $2\pi$  verschoben, sodass der niedrigste Wert der Phasenverschiebungsverteilung in dem Wertebereich  $(-\pi, \pi]$  liegt. Die stetige Phasenverschiebungsverteilung wird in Abbildung 4.11 c) als Gangunterschied präsentiert, wobei eine Phasenverschiebung von  $+\pi$  und  $-\pi$  einem Gangunterschied von  $+\lambda_L/2$  beziehungsweise  $-\lambda_L/2$  entspricht. Der dargestellte Gangunterschied entspricht nahezu den zugrunde liegenden, computergenerierten Daten. In den Bereichen, in denen die Linien vom Algorithmus korrigiert wurden, treten lokal begrenzte Abweichungen auf. Diese sind jedoch auf die reduzierte Datenqualität an der entsprechenden Stelle zurückzuführen.

Um die Eignung des Linien-Algorithmus für die Phasenverschiebungsverteilungen der vorliegenden Arbeit zu veranschaulichen, wird der Algorithmus exemplarisch auf die Phasenverschiebungsverteilung aus Abbildung 4.9 b) angewandt. Die Abbildung 4.13 zeigt dabei die Einzelschritte des Algorithmus. Da die Phasenverschiebungsverteilung der WFT-Methode wenig Rauschen enthält, lassen sich die Kanten der Phasensprünge zuverlässig bestimmen. In dem vorliegenden Fall wurden insgesamt 14 Linien erkannt. Da keine Linie unterbrochen ist, muss keine Linie korrigiert werden. Dies stellt den Normalfall der in dieser Arbeit untersuchten Phasenverschiebungsverteilungen dar. Falls Linien korrigiert werden müssen, handelt es sich meist um kurze Linien an dem linken, oberen oder rechten Bildrand. In den oberen Ecken der Verteilung lassen sich auch im vorliegenden Fall Randeffekte feststellen, die sich beispielsweise in der rechten, oberen Ecke durch eine im Randbereich abfallende Linie darstellen. Außerdem treten im oberen Bereich vermehrt kleine, isolierte Flächen auf, die sich durch eine größere Schwankung der Werte in diesem Bereich ergeben.

Die 14 Linien grenzen 15 Phasenflächen voneinander ab. Manche Flächen liegen dabei unmittelbar am Rand des Bildes oder sind zu klein um dargestellt zu werden, weshalb in Abbildung 4.13 c) nur neun dieser Flächen farblich dargestellt werden. Nachdem die

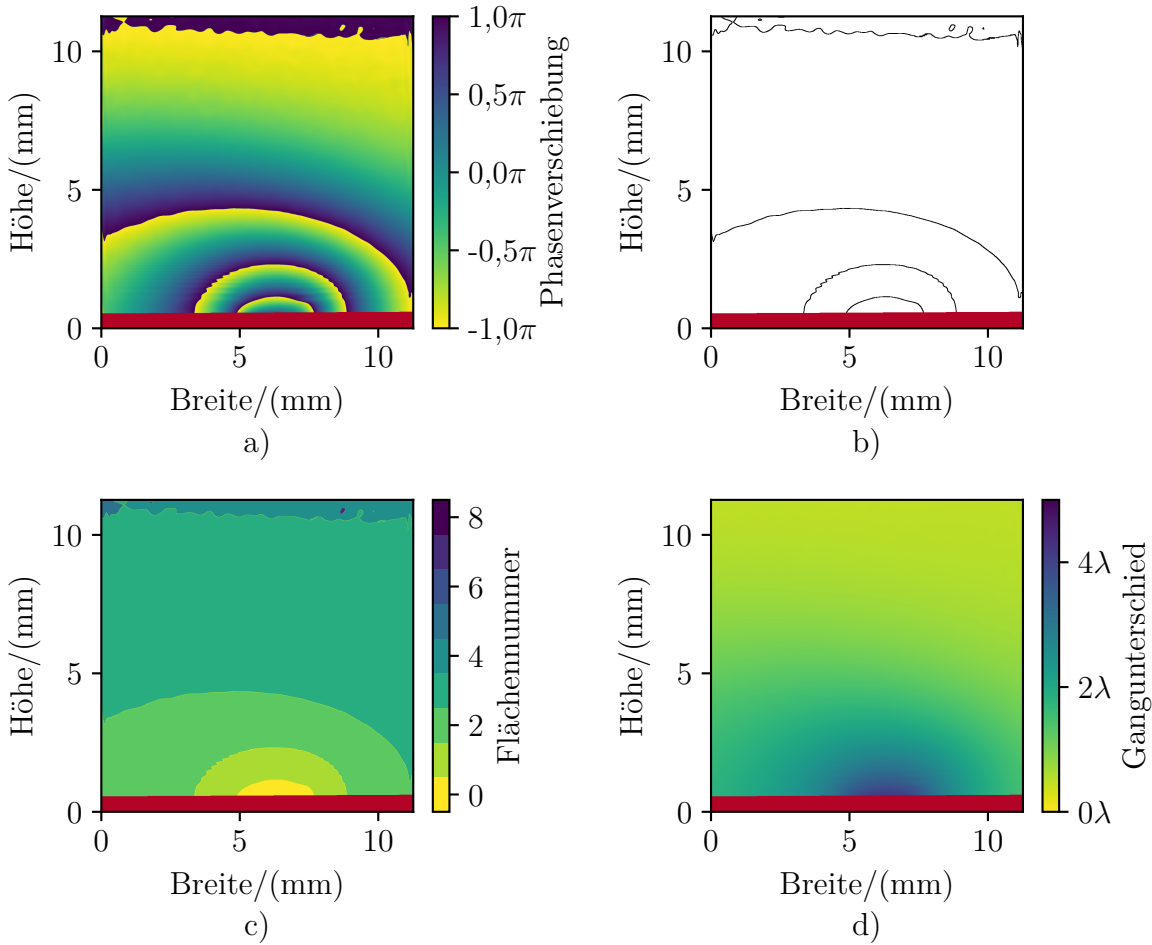


Abbildung 4.13: Die Abbildung zeigt die Zwischenschritte des Liniensalgorithmus, angewandt auf die Phasenverschiebungsverteilung einer verdunstenden Linie (a). Zunächst werden die Kanten der Phasensprünge detektiert (b). Da die Kanten im vorliegenden Fall nicht unterbrochen sind, müssen sie nicht korrigiert werden. Nachfolgend werden die Phasenflächen identifiziert (c) und die Phasensprünge zwischen benachbarten Phasenflächen beseitigt. Das Ergebnis stellt eine stetige Verteilung des Gangunterschieds einer verdunstenden Linie dar (d).

Flächen identifiziert wurden, können die an eine Linie angrenzenden Flächen bestimmt werden. In dem vorliegenden Fall gibt es eine Linie, die nur an eine Fläche grenzt. Hierbei handelt es sich um eine sehr kurze Linie mit acht Pixeln innerhalb einer Fläche im oberen Bereich des Bildes. Die Linie stellt ein solides Rechteck mit einer Länge von vier Pixeln und einer Breite von zwei Pixeln dar. Da die Linie keine Pixel umschließt, grenzt sie ausschließlich an die äußere Fläche. Bei der Elimination des Phasensprungs müssen daher nur die Werte der Linie korrigiert werden. Die übrigen 13 Linien grenzen an zwei Flächen, sodass bei der Elimination der Phasensprünge das oben beschriebene Standardverfahren für das Angleichen zweier Flächen angewandt werden kann. Das Ergebnis des *Phase Unwrappings* ist in Abbildung 4.13 d) dargestellt.

Die Rechenzeit des Liniensalgorithmus für die Elimination der Phasensprünge in der vorliegenden Phasenverschiebungsverteilung mit einer Höhe und Breite von jeweils 2048 px beträgt etwa 2,7 s. Für die gleiche Phasenverschiebungsverteilung benötigt der Herráez-

Algorithmus etwa 42 s. Es gilt hierbei zu beachten, dass die Rechenzeit des Linien-Algorithmus erheblich von der Komplexität der bearbeiteten Phasenverschiebungsverteilung abhängt. Die Rechenzeit des Algorithmus steigt mit der Anzahl der vorhandenen Phasengrenzen sowie der Anzahl der benötigten Linienkorrekturen an. Bei dem Herráez-Algorithmus hingegen ist die Rechenzeit abhängig von der Bildauflösung und unabhängig von der tatsächlichen Phasenverschiebungsverteilung.

### Zeitliches Phase Unwrapping

Das zeitliche *Phase Unwrapping* ergänzt das räumliche *Phase Unwrapping*, um systematische Fehler im Gangunterschied zu reduzieren. Da in dem vorliegenden Michelson-Interferometer auf Linsen vor der Kamera verzichtet wurde, ist die Messfläche der Messvorrichtung auf die Sensorfläche begrenzt. Aufgrund dieser räumlichen Limitation liegen bei einer Einzelmessung gegebenenfalls nicht alle Phasensprünge innerhalb der Messfläche, sodass das räumliche *Phase Unwrapping* den Gangunterschied um Vielfache von  $2\pi$  unterschätzt. Um diesem systematischen Fehler entgegenzuwirken, werden im zeitlichen *Phase Unwrapping* die ermittelten Gangunterschiede, die aus einer Aufnahmeserie einer

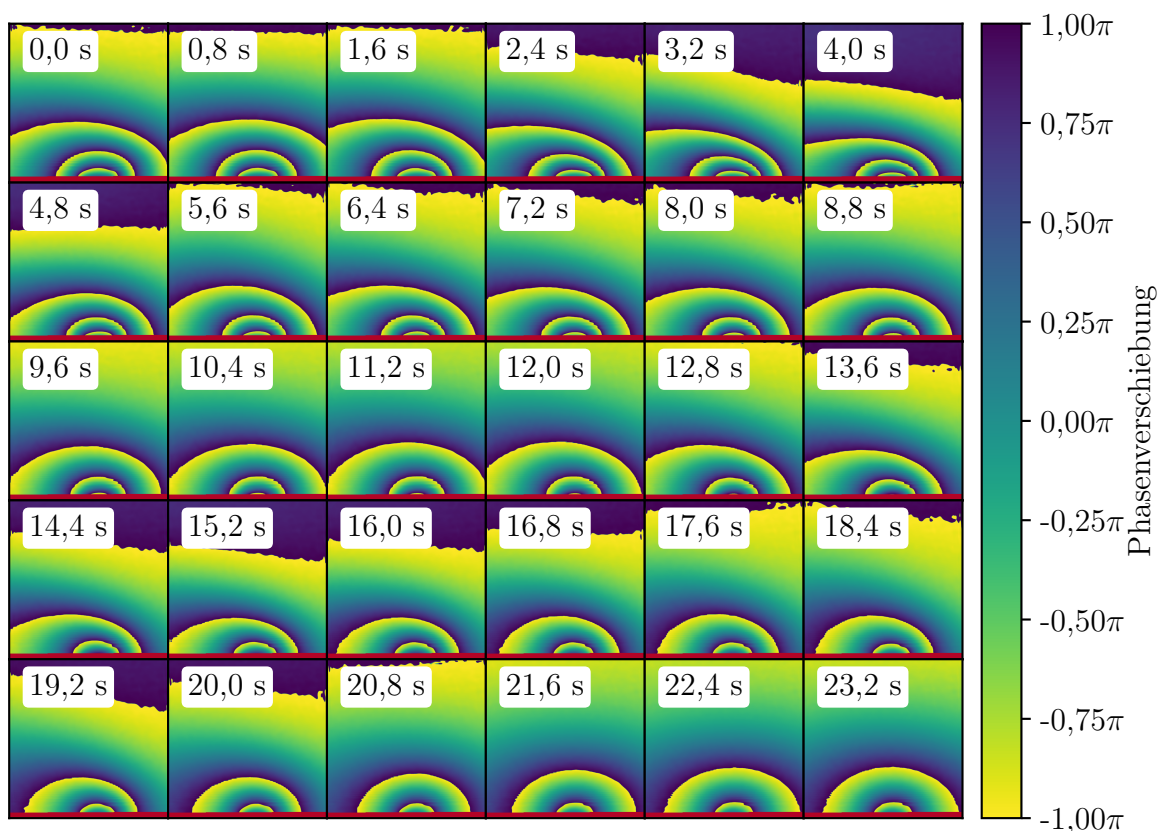


Abbildung 4.14: Dargestellt ist die Phasenverschiebungsverteilung einer verdunstenden Linie im zeitlichen Verlauf. Die Phasenverschiebungsverteilungen wurden mit der WFT-Methode aus den Interferogrammen einer Aufnahmeserie ermittelt. Letztere umfasst insgesamt 60 Bildaufnahmen, wobei nur die Phasenverschiebungsverteilung jeder zweiten Bildaufnahme dargestellt wird.



verdunstenden Linie resultieren, miteinander verglichen und auf Konsistenz geprüft. Eine Aufnahmeserie einer verdunstenden Linie besteht dabei aus 60 Bildaufnahmen, die in einem zeitlichen Abstand von 0,4 s aufgenommen werden.

Die Abbildung 4.14 zeigt exemplarisch den zeitlichen Verlauf der Phasenverschiebungsverteilung, wobei die einzelnen Verteilungen mit der WFT-Methode und einer Abtastrate von  $n_a = 50$  aus den Interferogrammen der Aufnahmeserie ermittelt wurden. Dargestellt wird jede zweite Phasenverschiebungsverteilung der Aufnahmeserie. Um den Einfluss der bereits im vorangegangenen Kapitel diskutierten Randeffekte zu minimieren, wurden die Ränder der Phasenverschiebungsverteilungen entfernt, das heißt es wurde ein zentrales Quadrat mit der Kantenlänge 2000 px aus der Gesamtaufnahme mit einer Kantenlänge von 2048 px geschnitten. Bei dem zeitlichen Verlauf in Abbildung 4.14 wird deutlich, dass die Anzahl der Phasensprünge und damit die Lösungsmittelkonzentration über der verdunstenden Linie mit zunehmender Zeit abnimmt. Außerdem wird im oberen Bereich der Verteilungen deutlich, dass die Lösungsmittelkonzentration teilweise von externen Windströmungen beeinflusst wird. Dies äußert sich durch die dynamische, asymmetrische Bewegung des obersten Phasensprungs. Die dynamische Bewegung führt bei den Phasenverschiebungsverteilungen zwischen 9,6 s bis 12,0 s und 21,6 s bis 23,2 s dazu, dass der oberste Phasensprung die Messfläche verlässt. Da jede Bildaufnahme im räumlichen *Phase Unwrapping* isoliert betrachtet wird, wird der Gangunterschied für diese Phasenverschiebungsverteilungen um  $2\pi$  beziehungsweise  $1\lambda$  unterschätzt. Die Gangunterschiede, die mittels des Linien-Algorithmus aus den Phasenverschiebungsverteilungen ermittelt wurden, sind in Abbildung 4.15 a) dargestellt. Die Abweichung der Gangunterschiede zwischen 9,6 s bis 12,0 s und 21,6 s bis 23,2 s lassen sich deutlich anhand des abweichenden Farbverlaufs erkennen.

Um die Verteilung der Gangunterschiede aneinander angleichen zu können, müssen die zeitlichen Phasensprünge identifiziert werden. Hierfür wird der zeitliche Verlauf der Phasenwerte in der Umgebung eines spezifischen Pixels betrachtet. Als spezifischer Pixel wird ein zentrales Pixel knapp über dem Fluidfilm gewählt (vgl. Pixel P1 in Abbildung 4.16 a)). Es wird ein Pixel nahe des Fluidfilms gewählt, da der Stofftransport in diesem Bereich durch Diffusion bestimmt wird und der Einfluss erzwungener Konvektion in diesem Bereich reduziert ist. Für den Wert des spezifischen Pixels wird ein gemittelter Phasenwert gebildet, indem der Wert des spezifischen Pixels sowie die Werte der Pixel in dessen unmittelbarer Umgebung mit einer gaußschen Gewichtung addiert werden. Der Verlauf dieses gemittelten Phasenwerts weist im zeitlichen Verlauf teilweise Phasensprünge um  $+2\pi$  oder  $-2\pi$  auf. Diese Phasensprünge werden identifiziert, indem die Differenz zeitlich aufeinanderfolgender, gemittelter Phasenwerte gebildet wird. Die Differenzen werden auf ganze Vielfache von  $\pi$  gerundet und es wird geprüft, ob alle Differenzen Vielfache von  $2\pi$  darstellen. Anschließend wird die kumulierte Summe aller Differenzen einer Bildaufnahmeserie gebildet. Das Ergebnis stellt eine Liste an Korrekturwerten dar, die genutzt werden, um Phasensprünge zu entfernen. Im Fall von Abbildung 4.15 a) weisen die Korrekturwerte von 0,0 s bis 8,8 s und von 12,8 s bis 20,8 s den Wert null und die Korrekturwerte von 9,6 s bis 12,0 s und von 21,6 s bis 23,2 s den Wert  $-2\pi$  auf. Die einzelnen Gangunterschiede werden korrigiert, indem der Korrekturwert subtrahiert wird, das heißt die entsprechenden Verteilungen werden um  $+2\pi$  verschoben. Die Verteilungen des Gangunterschieds werden dabei grundsätzlich nach oben korrigiert, das heißt die korrigierte Verteilung des Gangunterschieds ist größer oder gleich groß wie die Verteilung des Gangunterschieds vor dem zeitlichen



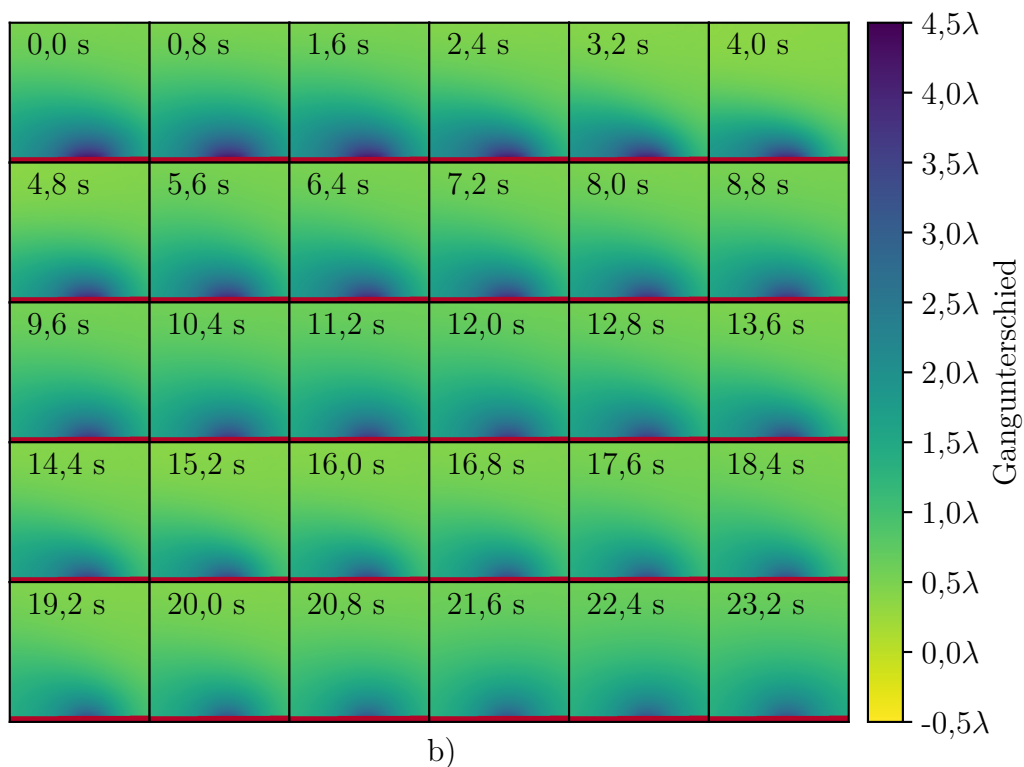
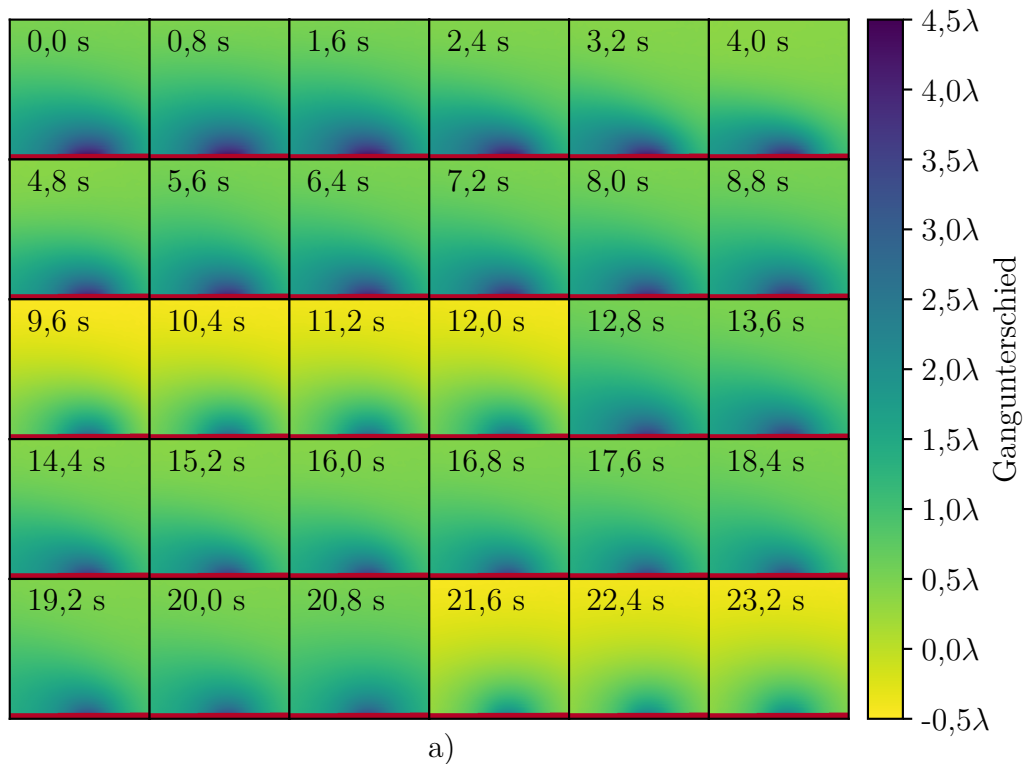


Abbildung 4.15: Die Phasenverschiebungsverteilungen aus Abbildung 4.14 werden mithilfe des Linien-Algorithmus in stetige Gangunterschiede gewandelt und oben dargestellt (a). Im zeitlichen *Phase Unwrapping* werden die Verteilungen für die Gangunterschiede von 9,6 s bis 12,0 s und 21,6 s bis 23,2 s an die restlichen Verteilungen der Gangunterschiede angepasst, sodass sich nach dem zeitlichen *Phase Unwrapping* eine stetige Veränderung der Verteilungen ergibt (b).

*Phase Unwrapping*. Das Ergebnis des zeitlichen *Phase Unwrappings* ist in Abbildung 4.15 b) dargestellt. Diese korrigierten Gangunterschiede können genutzt werden, um die zweidimensionale Konzentrationsverteilung eines Querschnitts der Lösungsmittelatmosphäre zu bestimmen.

Es gilt festzuhalten, dass es bei dem räumlichen und zeitlichen *Phase Unwrapping* zu systematischen Abweichungen bei der Bestimmung des Gangunterschieds kommen kann. Insbesondere kann der Gangunterschied um Vielfache von  $2\pi$  über- oder unterschätzt werden. Das räumliche *Phase Unwrapping* könnte verbessert werden, indem eine größere Messfläche erfasst wird, beziehungsweise ein größerer Kamerasensor genutzt wird. Hierdurch ließen sich mehr Phasensprünge simultan erfassen und der Gangunterschied würde an den Rändern der Messfläche auf nahezu null abfallen. Das zeitliche *Phase Unwrapping* ließe sich verbessern, indem die Dauer einer Bildaufnahmeserie verlängert wird. Eine Beobachtung des gesamten Verdunstungsprozesses, das heißt eine Beobachtung bis die gedruckte Linie komplett verdunstet ist, wäre hierbei vorteilhaft. Beide Verbesserungen waren jedoch für die vorliegende Arbeit aufgrund der Spezifikationen der Kamera sowie der sehr langen Verdunstungsdauer des binären Druckfluids nicht realisierbar.

#### 4.2.4 Berechnung der Konzentrationsverteilung

Um einen quantitativen Vergleich der Lösungsmittelatmosphäre gedruckter Linien zu ermöglichen, wird aus den zeitlich korrigierten Verteilungen der Gangunterschiede eine zweidimensionale Konzentrationsverteilung entlang eines Querschnitts der Lösungsmittelatmosphäre einer gedruckten Linie ermittelt. Hierfür wird eine Linie mit gleichbleibender Breite in unterschiedlichen Längen mehrfach gedruckt und die entsprechenden Interferogramme aufgezeichnet und ausgewertet. Im Folgenden wird die Berechnung der Konzentrationsverteilung exemplarisch für die Bildaufnahmen zum Zeitpunkt  $t = 0,0\text{s}$  der Versuchsreihe „N\_0“ vorgestellt (vgl. Abbildung 4.1).

Die Abbildung 4.16 a) zeigt eine Verteilung des Gangunterschieds für eine Linienlänge von 70 mm. Für die Veranschaulichung der linearen Regression wurden drei Pixel P1, P2 und P3 gewählt, die mittig über dem Fluidfilm liegen. Es wird dabei erwartet, dass die Konzentration des Lösungsmitteldampfs mit steigendem Abstand von der Fluidoberfläche abnimmt. Die Werte für den Gangunterschied werden für die drei Pixel extrahiert und gegen die Linienlänge aufgetragen. Das Diagramm in Abbildung 4.16 c) zeigt die Werte für die drei Pixel für zehn untersuchte Längen. Jede Linienlänge wurde insgesamt fünfmal gedruckt und vermessen. Die Einzelversuche werden in dem Diagramm mit den Ziffern 1-5 gekennzeichnet. Es wird deutlich, dass die Verteilungen von Einzelmessungen teilweise für alle drei Pixel in die gleiche Richtung abweichen. Für eine Linienlänge von 50 mm weicht beispielsweise die fünfte Einzelmessung für alle drei Pixel nach oben ab. Die zweite Einzelmessung bei der Linienlänge von 65 mm weicht hingegen nach unten ab. Bei den Abweichungen könnte sich um rein statistische Ausreißer handeln oder die Werte weichen aufgrund eines systematischen Fehlers im *Phase Unwrapping* ab. Da die Ursache nicht eindeutig identifiziert werden kann, werden die Werte unverändert gemittelt. Die statistische Abweichung der Einzelmessungen wird in der Standardabweichung des Mittelwerts berücksichtigt. Die Mittelwerte der fünf Einzelmessungen sowie deren Standardabweichungen werden für die

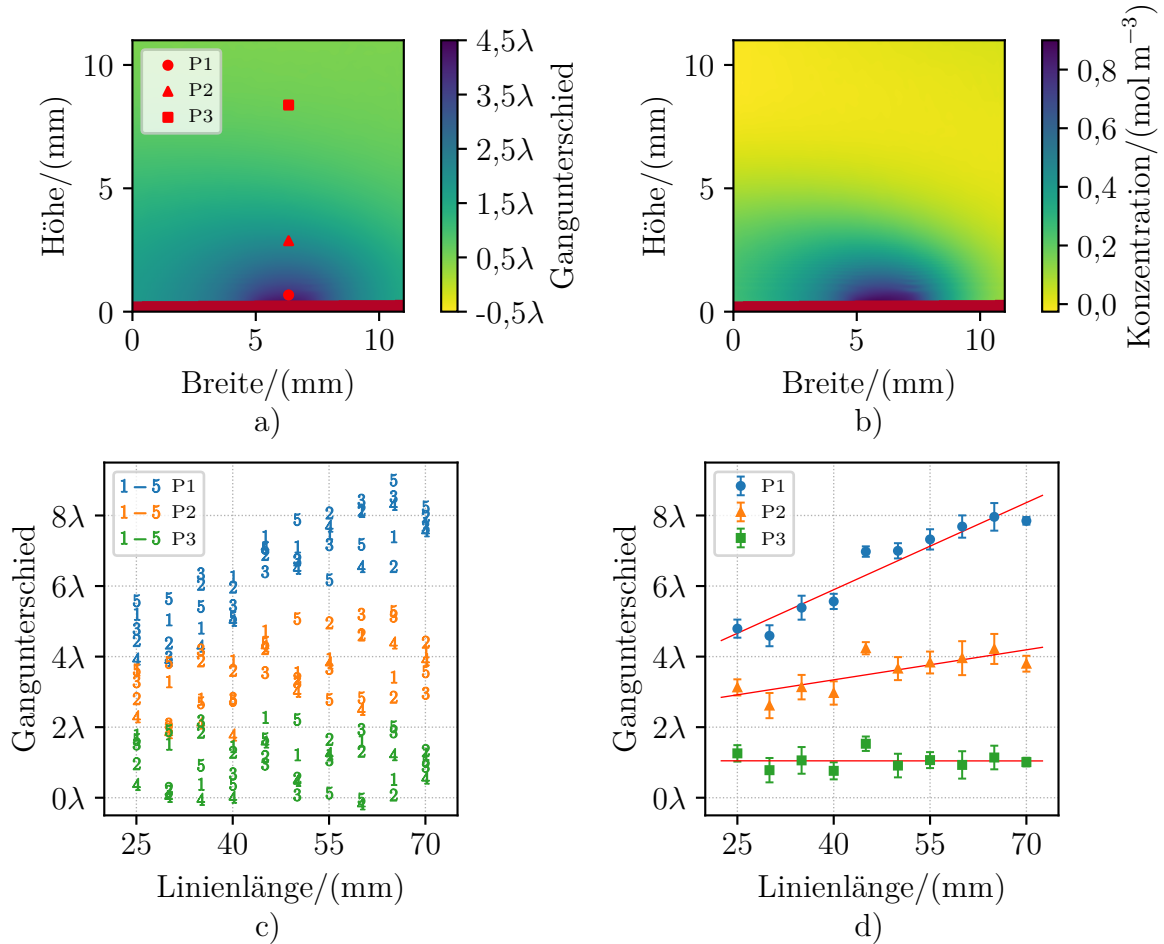


Abbildung 4.16: Die Abbildung a) zeigt die Verteilung des Gangunterschieds für eine Linienlänge von 70 mm. Die Abbildung b) stellt das Endergebnis der Auswertungsmethode dar, die Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs für einen Querschnitts durch den mittleren Bereich der Linie. In Abbildung a) werden drei Pixel (P1, P2 und P3) ausgewählt und für die entsprechenden Pixel die Werte des Gangunterschieds der fünf Einzelmessungen je Linienlänge dargestellt (c). Die Abbildung d) fasst die Werte mit einem Mittelwert und der Standardabweichung auf den Mittelwert zusammen. Aus der Steigung der rot dargestellten Regressionsgeraden wird die Konzentration des Lösungsmitteldampfs für das jeweilige Pixel bestimmt.

drei Pixel im Liniendiagramm in Abbildung 4.16 c) dargestellt. Außerdem sind die linearen Regressionsgeraden für die drei Pixel abgebildet. Die lineare Regression wurde gemäß der gewöhnlichen Methode der kleinsten Quadrate durchgeführt und die Steigung sowie der y-Achsenabschnitt der Regressionsgeraden bestimmt. Auf eine Gewichtung der Werte gemäß deren statistischen Fehlern wird aufgrund potenzieller systematischer Fehler und der dadurch eingeschränkten Aussagekraft der statistischen Fehler verzichtet.

Gemäß Gleichung (4.1) entspricht die Steigung der linearen Regressionsgeraden der doppelten Brechungsindexdifferenz. Aus dieser Brechungsindexdifferenz, dem Brechungsindex der umgebenden Luft sowie der Molrefraktion von Ethanol wird gemäß Gleichung (4.3) die Stoffmengenkonzentration berechnet. Dieses Vorgehen wird für jedes Pixel wieder-

holt, sodass eine zweidimensionale Verteilung der Stoffmengenkonzentration erhalten wird. Für die 3 mm breite Linie aus der Versuchsreihe „N\_0“ ist das Endergebnis für den Zeitpunkt  $t = 0,0\text{ s}$  in Abbildung 4.16 b) dargestellt. Die Ergebnisse für die weiteren Aufnahmezeitpunkte ergeben sich analog.

## 4.3 Charakterisierung der Auswertungsmethode

Die in diesem Kapitel präsentierte Auswertungsmethode hat mehrere Parameter, die der Nutzer in der grafischen Benutzeroberfläche wählen kann. Neben den Dateinamen, der Substratkonfiguration sowie einer minimalen Trägerfrequenz für die Analyse der Referenzaufnahmen, müssen insbesondere bei der WFT-Methode mehrere Parameter gewählt werden. Zwei entscheidende Parameter stellen dabei die Abtastrate  $n_a$  und der Schwellwert  $thr$  für das Schwellwertverfahren im Frequenzraum dar, deren Einfluss exemplarisch für eine Beispielmessung dargestellt wird. Außerdem wird der Einfluss des zeitlichen *Phase Unwrappings* auf die Bestimmung der Konzentrationsverteilung diskutiert und die Lokalisierung der Substratkante validiert. Für Letzteres werden die Kanten in der Bildaufnahme eines Passstifts bestimmt und der Abstand dieser Kanten mit dem bekannten Durchmesser des Passstifts verglichen.

### 4.3.1 Einfluss der Abtastrate

Wie in Kapitel 4.2.2 beschrieben, werden bei einer vollständigen Verarbeitung eines für diese Arbeit typischen Interferogramms mit der WFT-Methode über vier Millionen Fourier-Transformationen benötigt. Da sich die einzelnen Fenster der gefensterten 2D-DFT überschneiden, sind die Informationen der resultierenden EPFs teilweise redundant. Um den Rechenaufwand zu reduzieren, wird daher eine Abtastrate  $n_a$  eingeführt. Es wird nicht mehr für jedes Pixel die lokale Fouriertransformation durchgeführt, sondern es werden nur noch jede  $n_a$ -te Pixelreihe und jede  $n_a$ -te Pixelspalte berücksichtigt. Die Anzahl der benötigten Fourier-Transformationen sinkt demnach quadratisch mit zunehmender Abtastrate  $n_a$ , das heißt für die doppelte Abtastrate werden etwa ein Viertel der Fourier-Transformationen benötigt. Für die Gleichung (4.23) bedeutet die Einführung der Abtastrate  $n_a$ , dass in den beiden äußeren Summen nur noch jeder  $n_a$ -te Summand berücksichtigt wird.

Die Abbildung 4.17 zeigt den Einfluss der Abtastrate  $n_a$  auf die Phasenverschiebungsverteilung einer verdunstenden Linie. Die Kantenlänge des Fensters  $N'$  sowie die Standardabweichung der gaußschen Fensterfunktion  $\sigma_{w,d}$  entsprechen in dem dargestellten Vergleich den Standardwerten, das heißt  $N' = 240\text{ px}$  und  $\sigma_{w,d} = 40\text{ px}$ . Anhand der Abbildung wird deutlich, dass sich die Phasenverschiebungsverteilungen bis zu einer Abtastrate von  $n_a = 100$  kaum von der Phasenverschiebungsverteilung mit einer Abtastrate von  $n_a = 1$  unterscheiden. Erst für eine Abtastrate von  $n_a = 200$  weicht die Phasenverschiebungsverteilung erheblich ab und es werden periodische Abweichungen in einem Abstand der Abtastrate deutlich. Die einzelnen Fenster der 2D-DFT überschneiden sich für diese Abtastrate um nur 40 px. Zusätzlich haben die äußeren Pixel der jeweiligen Fenster aufgrund der gaußschen

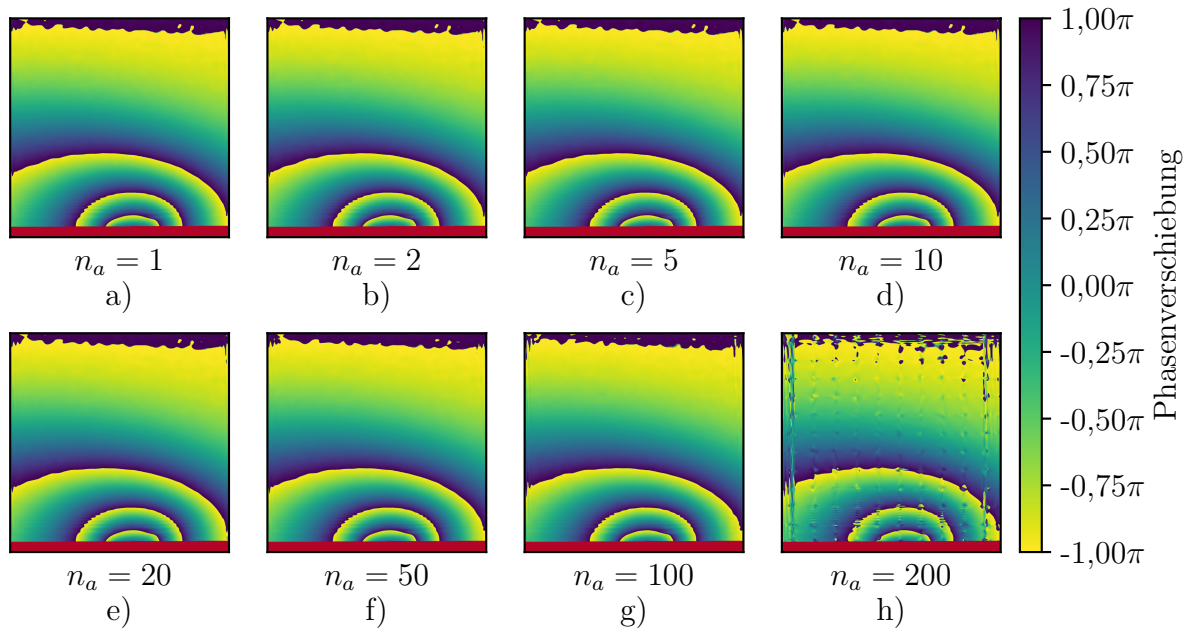


Abbildung 4.17: Die Bilderserie zeigt den Einfluss der Abtastrate  $n_a$  auf die Phasenverschiebungsverteilung. Die einzelnen Verteilungen wurden mit der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode aus dem Interferogramm einer verdunstenden Linie berechnet. Während die Phasenverschiebungsverteilungen für kleine Abtastraten kaum voneinander abweichen, kann die Phasenverschiebungsverteilung für große Abtastraten nicht vollständig rekonstruiert werden.

Fensterfunktion eine geringe Gewichtung, sodass die Phasenverschiebungsverteilung nicht vollständig rekonstruiert werden kann.

Für die nachfolgenden Auswertungen wird eine Abtastrate von  $n_a = 50$  gewählt, sodass die resultierende Phasenverschiebungsverteilung nicht maßgeblich beeinflusst wird. Durch die gewählte Abtastrate reduziert sich die Anzahl der Hin- und Rücktransformationen von über vier Millionen auf etwa 400. Die Berechnungsdauer für die Analyse eines Interferogramms reduziert sich dadurch um das etwa 500-Fache auf 11 s. Dies stellt eine akzeptable Berechnungsdauer für die 15 000 auszuwertenden Interferogramme dar. Die technischen Spezifikationen des Computers, auf dem die Berechnungen liefen, können der Tabelle A.2 entnommen werden.

### 4.3.2 Einfluss des Schwellwerts

Ein wichtiger Parameter der WFT-Methode stellt der Schwellwert des *Windowed-Fourier-Filtering* dar. Dieser Parameter ist weitgehend unabhängig von der Abtastrate. Ein optimaler Schwellwert reduziert das Rauschen der Phasenverschiebungsverteilung und erhält die informationstragenden Frequenzen. Das Schwellwertverfahren wird im Frequenzraum durchgeführt, da sich hier die informationstragenden Frequenzen von dem weißen Rauschen abgrenzen lassen (vgl. Kapitel 4.2.2). Der Schwellwert entspricht gemäß Gleichung (4.21) einer Mindestamplitude, das heißt die Amplituden der Frequenzen mit einer

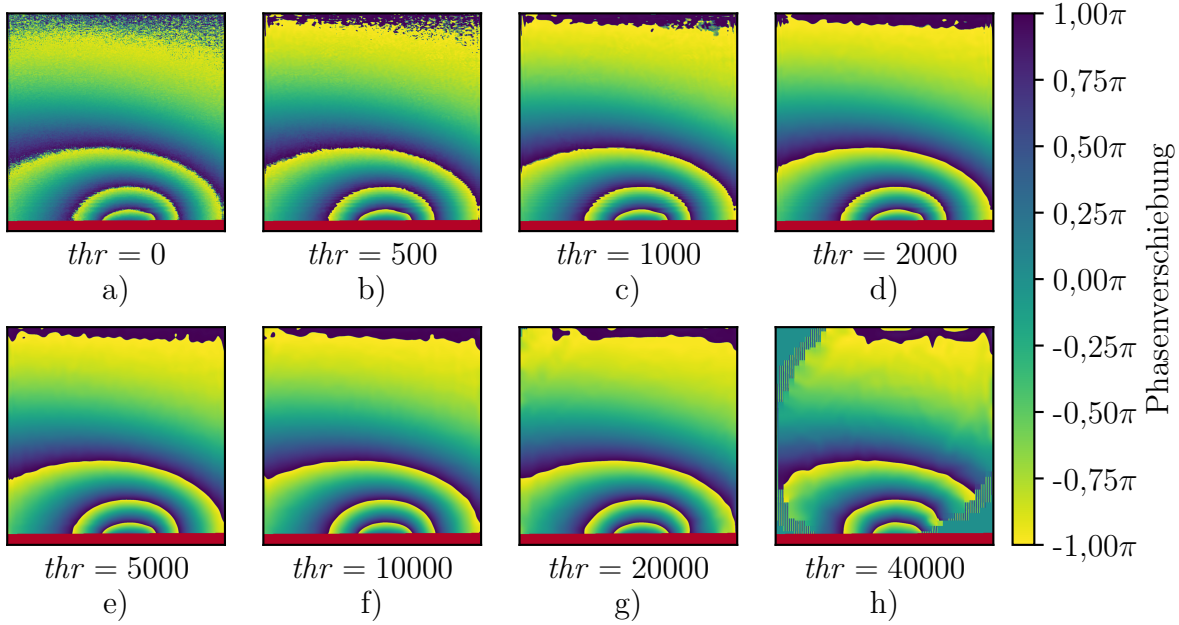


Abbildung 4.18: Die Bilderserie zeigt den Einfluss des Schwellwerts  $thr$  auf die Phasenverschiebungsverteilung. Die einzelnen Verteilungen wurden mit der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode mit einer Abtastrate von  $n_a = 50$  aus dem Interferogramm einer verdunstenden Linie berechnet. Während kleine Schwellwerte das Rauschen nicht effektiv unterdrücken, kann die Phasenverschiebungsverteilung für große Schwellwerte nicht vollständig rekonstruiert werden. Ein Schwellwert zwischen  $thr = 2000$  und  $thr = 20000$  liefert das gewünschte Resultat.

niedrigeren Amplitude als der Schwellwert werden null gesetzt, die anderen werden beibehalten. Um einen adäquaten Schwellwert festzulegen, gilt es zunächst die Amplitude der informationstragenden Frequenzen abzuschätzen. Gemäß Kemao (2008) ist der maximale Betrag der Amplitude eines intrinsischen EPF etwa  $2\sqrt{\pi}\sigma_{w,d}$ , wobei  $\sigma_{w,d}$  die diskrete Standardabweichung der gaußschen Fensterfunktion darstellt. Hierbei gilt es insbesondere die gewählte Normierung der gaußschen Fensterfunktion zu beachten. Im Gegensatz zu der Trägerfrequenz in den vorliegenden Interferogrammen hat ein intrinsisches EPF im Ortsraum eine Amplitude von eins, sodass die Amplitude der Trägerfrequenz in einem weiteren Term berücksichtigt werden muss. Die Amplitude von der Trägerfrequenz im Frequenzraum kann wie folgt abgeschätzt werden (vgl. Kapitel 4.2.2)

$$\hat{a}_{\text{amp}} \approx 2\sqrt{\pi}\sigma_{w,d}\frac{a_{\text{amp}}}{2}. \quad (4.34)$$

Hierbei stellt  $a_{\text{amp}}$  die Amplitude der Trägerfrequenz im Ortsraum und  $\hat{a}_{\text{amp}}$  die erwartete Amplitude im Frequenzraum dar. Da die Amplitude im Ortsraum aufgrund des Intensitätsprofils des Laserstrahls ortsabhängig ist, werden für die einzelnen Fenster der WFT-Methode unterschiedliche Beträge für die Amplitude der Trägerfrequenz im Frequenzraum erwartet. Insbesondere am Rand der Interferogramme fällt die Intensität und dementsprechend die Amplitude der Trägerfrequenz im Ortsraum ab. Gemäß Gleichung (4.34) sinkt dort auch die erwartete Amplitude im Frequenzraum. Für die vorliegenden Interferogramme schwankt die Amplitude der Trägerfrequenz im Ortsraum etwa zwischen 400 und 1400 Graustufen, sodass Amplituden im Frequenzraum zwischen  $3 \cdot 10^4$  und  $1 \cdot 10^5$  erwartet werden. Um die



Amplitude im Frequenzraum zu vereinheitlichen, könnte das Interferogramm im Ortsraum mithilfe der „Intensitätsreferenz“ normiert werden. Hierauf wurde jedoch verzichtet, da hierdurch weitere Störfrequenzen eingebracht werden könnten.

Die Abbildung 4.18 zeigt Phasenverschiebungsverteilungen, die aus einem Interferogramm einer verdunstenden Linie mit der WFT-Methode und unterschiedlichen Schwellwerten  $thr$  berechnet wurden. Es zeigt sich zunächst, dass für sehr geringe Schwellwerte das Rauschen nicht eliminiert werden kann. Für einen Bereich von  $thr = 2000$  bis  $thr = 20000$  wird das gewünschte Ergebnis erzielt, das heißt es wird einerseits das Rauschen effektiv unterdrückt, andererseits bleiben die informationstragenden Frequenzen erhalten. Da dieser Wertebereich vergleichsweise groß ist und sich die Phasenverschiebungsverteilungen in diesem Bereich kaum unterscheiden, wird die Wahl eines adäquaten Schwellwerts erleichtert.

Ein Schwellwert von  $thr = 40000$  liegt für die Fenster am Rand des Interferogramms teilweise über den Amplituden der informationstragenden Frequenzen im Frequenzraum. Dadurch gehen Informationen verloren und die Phasenverschiebungsverteilung kann nicht mehr vollständig rekonstruiert werden (vgl. Abbildung 4.18 h). Für die nachfolgenden Auswertungen wird der Schwellwert vergleichsweise niedrig gewählt, um diesen Effekt zu verhindern. Für die Versuchsreihen „N\_0“ und „N\_180“ wird ein Schwellwert von  $thr = 2000$  und für die Versuchsreihe N\_90 ein Schwellwert von  $thr = 4000$  gewählt. Bei der Versuchsreihe „B\_0“ wird für die Linienbreiten 1,1 mm und 2,4 mm ein Schwellwert von  $thr = 2000$ , für die Linienbreite 5,1 mm ein Schwellwert von  $thr = 1000$  und für die Linienbreite 11 mm ein Schwellwert von  $thr = 1500$  gewählt. Die unterschiedlichen Schwellwerte sind notwendig, da die Trägerfrequenzen und deren Amplituden im Ortsraum bei den unterschiedlichen Versuchen teilweise voneinander abweichen.

### 4.3.3 Einfluss des zeitlichen Phase Unwrappings

Das Ziel des zeitlichen *Phase Unwrappings* ist es systematischen Fehlern entgegenzuwirken, die durch die begrenzte Messfläche im räumlichen *Phase Unwrapping* hervorgerufen werden (vgl. Kapitel 4.2.3). Im Rahmen der Auswertung der durchgeführten Messreihen wurde jedoch festgestellt, dass das zeitliche *Phase Unwrapping* Messabweichungen partiell verstärkt, sodass die zeitlich korrigierten Gangunterschiede stärker von der erwarteten Linearität abweichen als die nicht korrigierten Gangunterschiede. Die Abbildung 4.19 zeigt einen direkten Vergleich, das heißt die Werte für den Gangunterschied vor und nach dem zeitlichen *Phase Unwrapping* werden gegenübergestellt. Die dargestellten Werte sind Bestandteil der Messreihe „B\_0“ mit einer Linienbreite von 2,4 mm. Vergleicht man die obere und die untere Reihe, so fällt auf, dass für eine Linienlänge von 30 mm die Einzelmessungen 1, 2 und 5, für eine Linienlänge von 50 mm die Einzelmessungen 1 und 2 und für eine Linienlänge von 60 mm die Einzelmessung 4 korrigiert wurden. Die korrigierten Werte des Gangunterschieds sind größer oder gleich groß wie die Werte vor dem zeitlichen *Phase Unwrapping*. Betrachtet man die linearen Regressionen auf der rechten Seite der Abbildung, so fällt auf, dass die Werte vor der Korrektur einen stärkeren linearen Zusammenhang aufweisen. Insbesondere die Werte für den Gangunterschied bei 30 mm wirken nach der Korrektur zu hoch. Im nächsten Abschnitt wird die physikalische Plausibilität des zeitlichen *Phase Unwrappings* rekapituliert, sodass daran anschließend

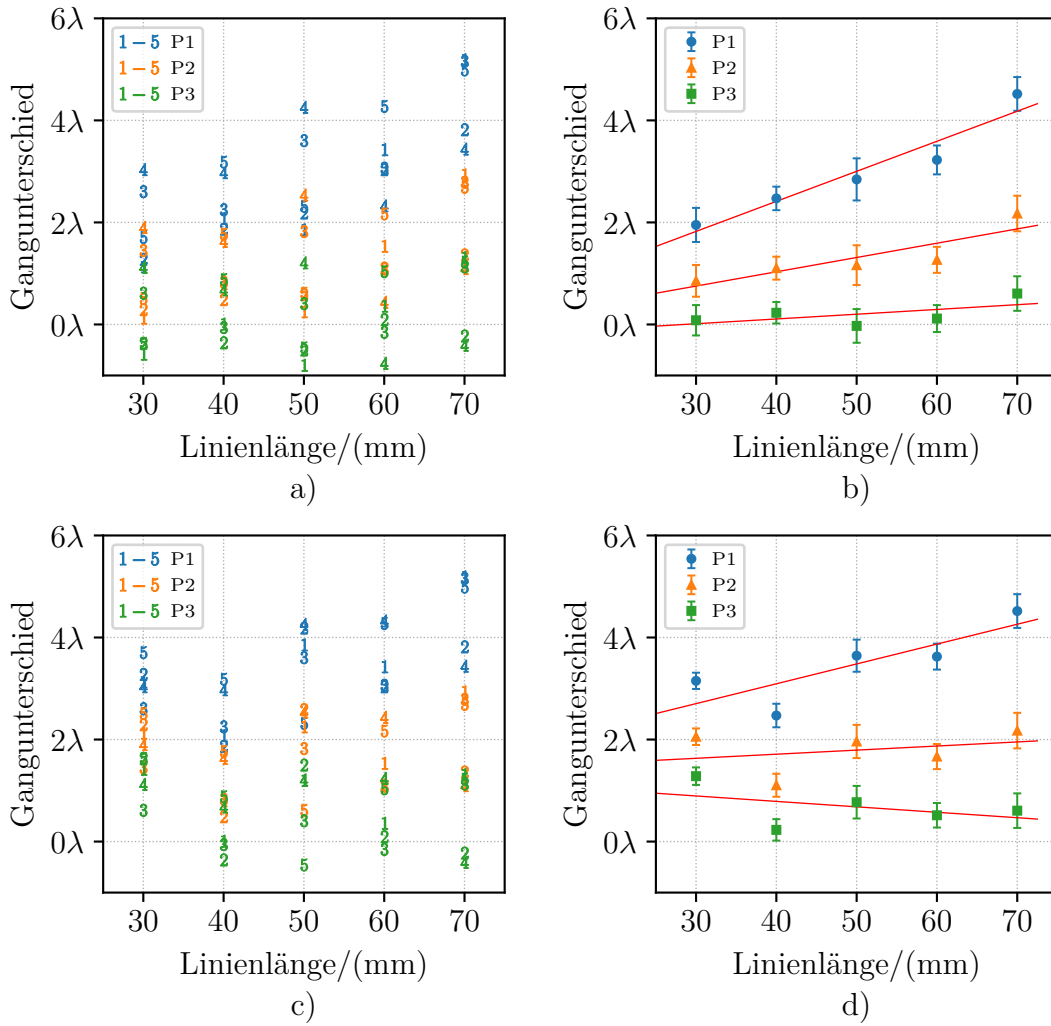


Abbildung 4.19: Die Gangunterschiede von drei exemplarischen Pixeln (P1, P2 und P3) werden gegen die Linienlänge aufgetragen. Die obere Reihe zeigt die Werte der fünf Einzelmessungen (a) und den Mittelwert dieser fünf Einzelmessungen für die jeweilige Linienlänge (b) vor dem zeitlichen *Phase Unwrapping*. Die Fehlerbalken stellen die Standardabweichung auf den Mittelwert dar. Außerdem wird in rot die Ausgleichsgerade der linearen Regression präsentiert. Die untere Reihe zeigt die entsprechenden Diagramme nach dem zeitlichen *Phase Unwrapping* (c, d). Die dargestellten Werte sind Bestandteil der Versuchsreihe „B\_0“ mit einer Linienbreite von 2,4 mm (vgl. Abbildung 4.1).

mögliche Fehlerquellen diskutiert werden können.

Es wird davon ausgegangen, dass die Konzentration des Lösungsmitteldampfs an der Fluidoberfläche am höchsten ist. Demnach ist dort auch der absolute Gangunterschied am höchsten. Mit zunehmender Verdunstungszeit nimmt die Ethanolkonzentration in und über der gedruckten Linie ab. Die Phasensprünge bewegen sich demnach in Richtung der Fluidoberfläche und verschwinden dort. Neue Phasensprünge, die zuvor gegebenenfalls außerhalb des Messbereichs lagen, werden nun sichtbar. Wird ausschließlich der durch den Lösungsmitteldampf hervorgerufene Gangunterschied berücksichtigt, so ist es physikalisch plausibel, die Gangunterschiede einer Einzelmessung grundsätzlich nach oben zu



korrigieren, sollte ein Phasensprung in einer Aufnahmeserie detektiert werden. Bei den vorliegenden Aufnahmeserien kommt es zu positiven und negativen zeitlichen Phasensprüngen. Positive Phasensprünge treten auf, wenn ein neuer Phasensprung, der zuvor außerhalb des Messbereichs lag, sichtbar wird. Negative Phasensprünge treten auf, wenn Luftströmungen einen bereits sichtbaren Phasensprung aus dem Messbereich heraus bewegen.

Neben dem durch den Lösungsmitteldampf induzierten Gangunterschied, können Temperatureffekte oder leichte Verstellungen des Interferometers eine Änderung des Gangunterschieds hervorrufen. Mithilfe der „Interferenzreferenz mit Substrat“ wird die Phasenverschiebungsverteilung eines trockenen Substrats bestimmt. Die Referenz wird vor einer Versuchsreihe aufgezeichnet und deren Phasenverschiebungsverteilung wird von jeder Einzelmessung der Versuchsreihe abgezogen. Es wurde festgestellt, dass sich die Phasenverschiebungsverteilung des trockenen Substrats im Laufe einer Aufnahmeserie ändert. Dies ist voraussichtlich primär auf eine Veränderung der Substrattemperatur oder eine Veränderung der klimatischen Bedingungen während der Versuchsreihe zurückzuführen. Eventuell verursachen auch die Roboterbewegungen geringe Änderungen im interferometrischen Aufbau. Die wahre Phasenverschiebungsverteilung des trockenen Substrats weicht demnach für jede Einzelmessung leicht von der zuvor aufgezeichneten Referenz ab. Aufgrund der sehr langen Verdunstungszeit des binären Gemischs kann die Referenz nicht für jede Einzelmessung bestimmt werden. Eine manuelle Säuberung des Substrats in der Messposition ist nicht möglich und könnte zu zusätzlichen Störungen führen. Da für die jeweilige Einzelmessung nicht die wahre Phasenverschiebungsverteilung des trockenen Substrats, sondern stets die Phasenverschiebungsverteilung der Referenz abgezogen wird, ergeben sich potenziell zusätzliche Phasensprünge, die durch das zeitliche *Phase Unwrapping* fälschlicherweise als durch die Lösungsmittelkonzentration induzierte Phasensprünge erkannt werden. Bereits ein zusätzlicher Phasensprung zwischen zwei der 60 Einzelaufnahmen einer Einzelmessung führt zu einer Korrektur aller Aufnahmen der Einzelmessung. Die resultierende systematische Abweichung ergibt insbesondere bei einer geringen Anzahl von räumlichen Phasensprüngen eine große relative Abweichung.

Für eine nachvollziehbare Datenauswertung sollte die Auswertungsmethode über alle Versuchsreihen konstant gehalten werden, gleichzeitig verstärkt das zeitliche *Phase Unwrapping* potenziell systematische Fehler. Daher wird für die Auswertung aller Versuchsreihen auf die Anwendung des zeitlichen *Phase Unwrappings* verzichtet. Die zeitliche Inkonsistenz der Verteilungen des Gangunterschieds wird dadurch akzeptiert, deren Einfluss jedoch durch die Mittelung über mehrere Einzelmessungen reduziert. Es wird an dieser Stelle betont, dass das zeitliche *Phase Unwrapping* potenziell die Reliabilität der ermittelten Gangunterschiede erhöhen kann. Für einen längeren Beobachtungszeitraum ließen sich die Vorteile des Algorithmus besser nutzen. Würde der gesamte Verdunstungsprozess aufgezeichnet, so ließe sich eine „Intensitätsreferenz mit Substrat“ für jede Einzelmessung aufzeichnen, wodurch die Robustheit des zeitlichen *Phase Unwrappings* stark erhöht würde.

#### 4.3.4 Validierung der Kantendetektion

Aufgrund von Beugungseffekten ist die Lokalisierung der Substratkante in den Bildaufnahmen nicht trivial. Das in Kapitel 4.2.1 beschriebene Vorgehen basiert auf dem Modell der

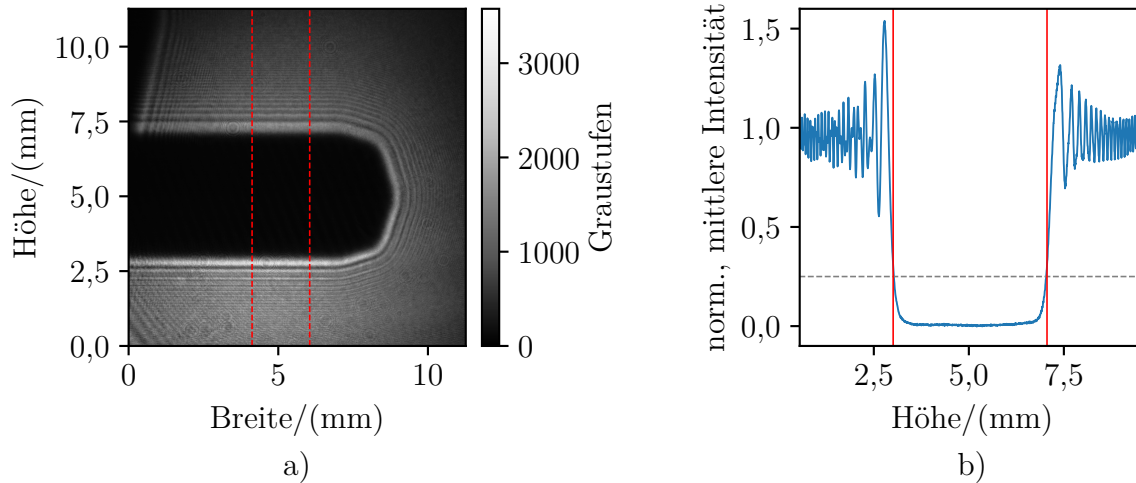


Abbildung 4.20: Die linke Abbildung zeigt das Beugungsbild eines Passtifts mit einem Durchmesser von 4 mm (a). Die Pixelwerte zwischen den roten, gestrichelten Linien werden reihenweise aufsummiert, normiert und gegen die Höhe der Pixelreihe aufgetragen (b). Die Kanten des Passtifts liegen an den Positionen, an denen die normierte Intensität den Wert 0,25 aufweist. Die Positionen der Kanten des Passtifts sind mit roten, durchgehenden Linien markiert.

Kantenbeugung an einer einfachen, geraden Kante. Um die Anwendbarkeit des Modells zu prüfen und die Kantendetektion zu validieren wird das Beugungsbild eines Passtifts analysiert. Es werden die gegenüberliegenden Kanten im Beugungsbild bestimmt und deren Distanz mit dem bekannten Durchmesser des Passtifts verglichen.

Die Abbildung 4.20 a) zeigt das Beugungsbild eines Passtifts. Für die Bildaufnahme wird der runde Passtift in den Messarm des Interferometers gehalten und der Referenzarm abgedunkelt. Es lassen sich deutlich die Beugungsmuster an den Kanten des Passtifts erkennen. Für die Lokalisierung der gegenüberliegenden Kanten werden die Pixelwerte zwischen den gestrichelten, roten Linien aufsummiert und mit einer ebenfalls aufgenommenen Helligkeitsreferenz analog zu dem Vorgehen in Kapitel 4.2.1 normiert. Die normierte Intensität wird gegen die Höhe der Pixelreihe in dem Diagramm in Abbildung 4.20 aufgetragen. Anschließend werden die Positionen bestimmt, an denen die normierte Intensität den Wert 0,25 annimmt. Diese Positionen entsprechen den Kantenpositionen des Passtifts und werden in dem Diagramm mit durchgehenden, roten Linien gekennzeichnet. Die ermittelten Kanten haben eine Distanz von 736 Pixelreihen, beziehungsweise 4,048 mm. Der mittels einer Mikrometerschraube gemessene Durchmesser des Passtifts beträgt 4 mm. Die absolute Abweichung von der Bestimmung durch das Beugungsbild liegt demnach bei  $48 \mu\text{m}$  beziehungsweise bei etwa 9 px. Diese geringe Abweichung wird im Rahmen der Versuchsauswertung toleriert.

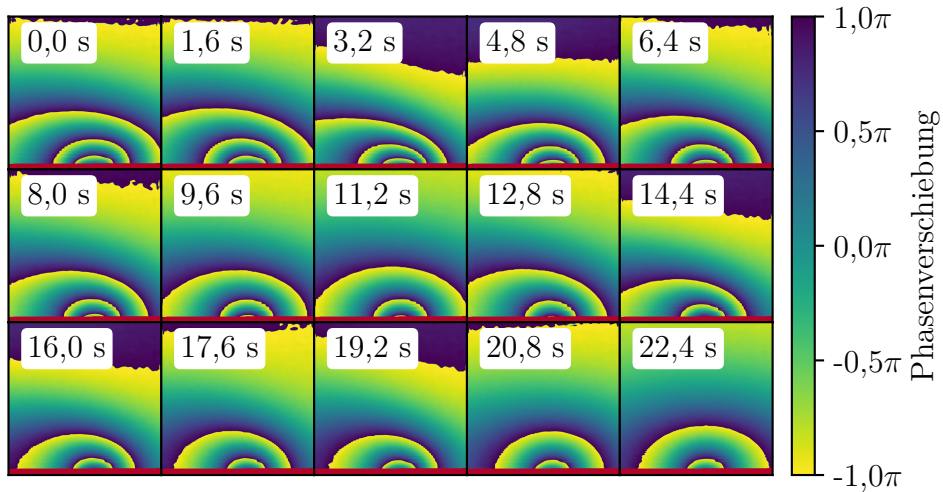
# 5 Ergebnisse und Diskussion

Das vorliegende Kapitel nutzt die in Kapitel 4.2 vorgestellte Auswertungsmethode, um die Stoffmengenkonzentration des Ethanoldampfs mithilfe der Interferogramme der einzelnen Versuchsreihen zu bestimmen. Anhand der Versuchsreihen „N\_0“, „N\_90“ und „N\_180“ wird der Einfluss der Substratneigung auf die Lösungsmittelatmosphäre einer verdunstenden Linie evaluiert (vgl. Abbildung 4.1). Hierfür wird zunächst der zeitliche Verlauf der Phasenverschiebungsverteilung betrachtet und anschließend die Stoffmengenkonzentration und der Diffusionsstrom für die unterschiedlichen Aufnahmezeitpunkte dargestellt. Anschließend wird anhand der Ergebnisse der Versuchsreihe „B\_0“ der Einfluss der Linienebreite auf die Lösungsmittelatmosphäre der verdunstenden Linie evaluiert. Dabei wird die Gliederung der Betrachtung der Substratneigung weitestgehend übernommen. Die Ergebnisse in diesem Kapitel werden gleichzeitig dargestellt und diskutiert, das heißt ihre Plausibilität wird überprüft und mögliche Störgrößen werden identifiziert.

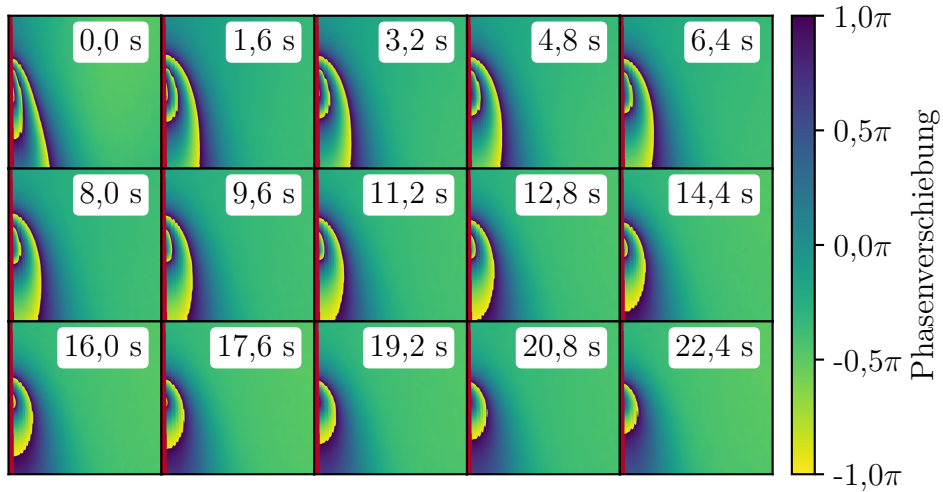
## 5.1 Einfluss der Substratneigung

Der Einfluss der Substratneigung auf die Stoffmengenkonzentration über einem verdunstenden Fluidfilm wird untersucht, indem wiederholt eine 3 mm breite Linie auf ein Aluminiumsubstrat gedruckt wird. Die Substratneigung beträgt  $0^\circ$  für die Versuchsreihe „N\_0“, das heißt das Substrat ist waagrecht und die Flächennormale der bedruckten Substratoberfläche zeigt nach oben. Für die Versuchsreihen „N\_90“ und „N\_180“ wird die Substratneigung auf  $90^\circ$  beziehungsweise  $180^\circ$  erhöht und die Flächennormale der bedruckten Substratoberfläche zeigt nach rechts beziehungsweise senkrecht nach unten. Für die drei Versuchsreihen werden insgesamt 150 Linien unterschiedlicher Länge gedruckt, sodass aufgrund des Versuchsumfanges die Versuche auf mehrere Versuchstage aufgeteilt wurden. Die Temperatur und die Luftfeuchtigkeit des Labors konnten während der Versuche aufgrund unzureichender Klimatisierung nicht konstant gehalten werden. Um die Versuchsbedingungen dennoch zu berücksichtigen, wurden die Temperatur, die Luftfeuchtigkeit und der Luftdruck während der Versuche kontinuierlich aufgezeichnet. Die Wertebereiche der einzelnen Parameter für die jeweiligen Versuchsreihen können der Tabelle 4.2 entnommen werden.

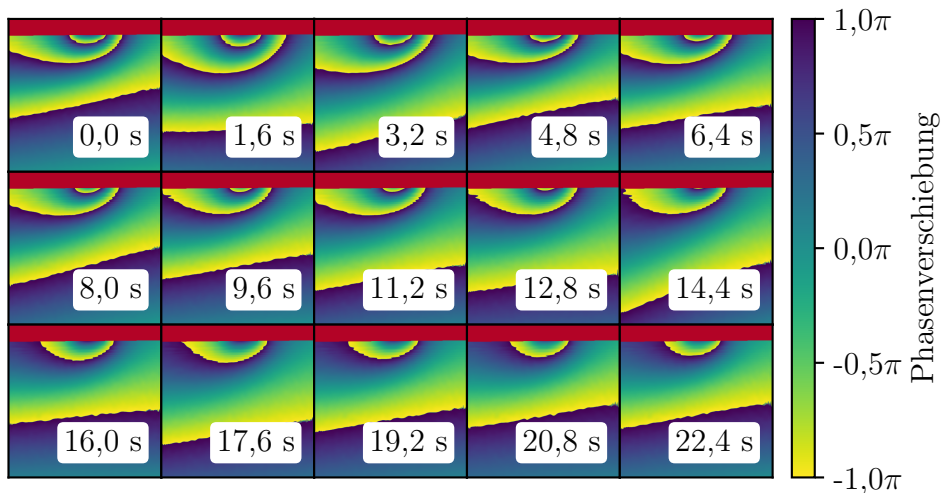
Der anfängliche Sättigungsdampfdruck des Ethanols liegt für das verwendete, binäre Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch bei etwa 3,3 kPa für die Versuchsreihe „N\_0“, bei 2,9 kPa für „N\_90“ und bei 3,1 kPa für „N\_180“ (vgl. Antoine-Gleichung 2.6 und Raoult'sches Gesetz 2.8). Es wird dabei näherungsweise davon ausgegangen, dass die Temperatur des Ethylenglykol-Ethanol-Gemischs dem arithmetischen Mittel der Raumtemperatur während der jeweiligen Versuchsreihe entspricht. Aus dem Sättigungsdampfdruck lässt sich die



a)



b)



c)

Abbildung 5.1: Dargestellt wird der zeitliche Verlauf jeweils einer Phasenverschiebungsverteilung der Versuchsreihen „N\_0“ (a), „N\_90“ (b) und „N\_180“ (c). Es handelt sich jeweils um die Phasenverschiebungsverteilungen einer 70 mm langen und 3 mm breiten Linie.

Dichte der gesättigten Luft und somit gemäß Gleichung (2.30) die dimensionslose Grashof-Zahl berechnen. Wird die Linienbreite von 3 mm als charakteristische Länge des Systems gewählt, so ergeben sich für die Grashof-Zahl Werte zwischen 2,6 und 2,9, das heißt die Auftriebskräfte sind etwas größer als die viskosen Kräfte. Es ist daher zu erwarten, dass natürliche Konvektion auftritt und die Verteilung des Lösungsmitteldampfs dadurch beeinflusst wird. Der Wert ist jedoch nur etwas größer als eins, sodass die Kräfte in etwa in einer Größenordnung liegen werden. Durch die Änderung der Substratneigung ändert man den Winkel zwischen der Flächennormalen des Substrats und dem Gravitationsvektor  $\mathbf{g}$ . Da die natürliche Konvektion von der Gravitation der Erde angetrieben wird, wird erwartet, dass sich dadurch die natürliche Konvektion und somit auch die Lösungsmitteldampfverteilung über der verdunstenden Linie verändert. Insbesondere für die Versuchsreihe „N\_90“ wird eine asymmetrische Verteilung des Lösungsmitteldampfs erwartet.

### 5.1.1 Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen

Die Abbildung 5.1 zeigt den zeitlichen Verlauf jeweils einer Phasenverschiebungsverteilung der drei Versuchsreihen „N\_0“, „N\_90“ und „N\_180“. Mithilfe der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode wurden die dargestellten Phasenverschiebungsverteilungen aus den Interferogrammen einer 70 mm langen Linie berechnet. Die Berechnung erfolgte dabei gemäß der in Kapitel 4.2.2 präsentierten Methode, wobei eine Abtastrate von  $n_a = 50$  gewählt wurde. Der Schwellwert des Schwellwertverfahrens im Frequenzraum wurde für die Versuchsreihen „N\_0“ und „N\_180“ auf  $thr = 2000$  und für die Versuchsreihe „N\_90“ auf  $thr = 4000$  gesetzt. Um den Einfluss von Randeffekten zu minimieren, wird analog zum zeitlichen *Phase Unwrapping* die Phasenverschiebungsverteilung nach der Berechnung auf eine Bildgröße von 11 mm  $\times$  11 mm reduziert, indem ein zentrales Quadrat mit der Kantenlänge 2000 px aus der Gesamtverteilung mit einer Kantenlänge von 2048 px geschnitten wird. Von den 60 Bildaufnahmen einer Einzelmessung, die in einem zeitlichen Abstand von 0,4 s aufgenommen wurden, wird aus Darstellungsgründen jeweils nur jede vierte Phasenverschiebungsverteilung gezeigt. Die gedruckte Linie befindet sich jeweils ungefähr mittig auf dem rot maskierten Substrat.

Die Phasensprünge in den dargestellten Phasenverschiebungsverteilungen entsprechen Linien konstanter Ethanolkonzentration, sodass anhand ihrer die qualitative Verteilung der Ethanolkonzentration über der verdunstenden Linie nachvollzogen werden kann. Für die Versuchsreihe „N\_0“ sind maximal vier Phasensprünge sichtbar. Die Phasensprünge in der Nähe der gedruckten Linie umschließen die gedruckte Linie etwa elliptisch, während der Phasensprung am oberen Bildrand näherungsweise horizontal verläuft. Da die Ethanolkonzentration und dessen Gradient unmittelbar über dem Fluidfilm am höchsten ist, liegen die Phasensprünge hier am dichtesten zusammen. Der durch das Lösungsmittel hervorgerufene absolute Gangunterschied ist hier am größten. Mit fortschreitender Verdunstungszeit nimmt der Stoffmengenanteil des Ethanols im binären Fluidgemisch ab und entsprechend des Raoult'schen Gesetzes reduziert sich dadurch dessen Partialdruck. Der geringere Partialdruck beziehungsweise die geringere Ethanolkonzentration über dem Fluidfilm führt zu einer Abnahme des absoluten Gangunterschieds, sodass die Anzahl der sichtbaren Phasensprünge tendenziell ebenfalls abnimmt. Bei der verdunstungsgetriebenen Abnahme des Gangunterschieds bewegen sich die Phasensprünge in Richtung der

Fluidoberfläche bis sie nicht mehr vorhanden sind. Im Laufe der Verdunstung können Phasensprünge, die zuvor außerhalb des Messbereichs und dementsprechend nicht sichtbar waren, in den Messbereich einrücken und demnach die Anzahl der sichtbaren Phasensprünge erhöhen. Außerdem können Phasensprünge auch vorübergehend aufgrund von externen Luftströmungen den Messbereich verlassen. Dieser Sachverhalt könnte durch eine zeitliche Betrachtung der Phasenverschiebungsverteilungen berücksichtigt werden. Dennoch wurde auf die Anwendung des zeitlichen *Phase Unwrappings* für die vorliegenden Versuchsreihen verzichtet, da sich die Phasenverschiebungsverteilung des trockenen Substrats im Laufe einer Versuchsreihe ändert und demnach ein fehlerfreies zeitliches *Phase Unwrapping* nicht garantiert werden kann (vgl. Kapitel 4.3.3 und Abbildung 5.6).

Bei den Phasenverschiebungsverteilungen der Versuchsreihe „N\_90“ werden maximal drei Phasensprünge sichtbar. Die Anzahl der Phasensprünge nimmt innerhalb der dargestellten 22,4s stark ab, sodass davon ausgegangen werden kann, dass die Verdunstungsrate hier größer ist als für die Versuchsreihe „N\_0“. Im Gegensatz zu den anderen beiden Versuchsreihen fällt die Phasenverschiebung bei der Versuchsreihe „N\_90“ innerhalb des Messbereichs in einem großen Bereich auf einen Wert nahe null ab, sodass in diesem Fall davon ausgegangen werden kann, dass kein weiterer Phasensprung außerhalb des Messbereichs liegt. Die Phasenverschiebungsverteilungen unter 15s weisen eine starke Asymmetrie auf. Da die mit Ethanol angereicherte Luft schwerer als die umgebende Luft ist, sinkt sie nach unten. Die Asymmetrie der Ethanolkonzentration über der verdunstenden Linie wird demnach von dem konvektiven Stofftransport hervorgerufen, der zusätzlich zum diffusivem Stofftransport entsteht. Im Laufe der Verdunstung nimmt wie bereits zuvor der Stoffmengenanteil von Ethanol in der gedruckten Linie und daher die Ethanolkonzentration in der Luft über der gedruckten Linie ab. Hierdurch werden die Auftriebskräfte geringer und die dimensionslose Grashof-Zahl kleiner. Es ist demnach physikalisch plausibel, dass der konvektive Einfluss auf die Lösungsmitteldampfverteilung über einer gedruckten Linie mit zunehmender Verdunstungszeit abnimmt.

Die Phasenverschiebungsverteilungen der Versuchsreihe „N\_180“ entsprechen ungefähr den horizontal gespiegelten Phasenverschiebungsverteilungen der Versuchsreihe „N\_0“. In den ersten Phasenverschiebungsverteilungen sind drei Phasensprünge sichtbar, wovon einer im Laufe der Verdunstung an der Substratoberfläche verschwindet. Die Phasenverschiebungsverteilungen weisen teilweise eine Asymmetrie auf, zum Beispiel verläuft der unterste Phasensprung im Messbereich leicht schräg. Diese Asymmetrie könnte beispielsweise auf externe Luftströmungen oder eine minimale Verstellung des Interferometers gegenüber der „Interferenzreferenz mit Substrat“ hindeuten. Die Phasenverschiebung dieser Referenz wird von jeder ermittelten Phasenverschiebung einer Versuchsreihe abgezogen, sodass eine Diskrepanz aufgrund einer Verstellung des Interferometers systematische Abweichungen in den Phasenverschiebungsverteilungen ergibt.

### 5.1.2 Bestimmung der Stoffmengenkonzentration

Um aus den qualitativen Verteilungen der Phasenverschiebung eine quantitative Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich der gedruckten Linie zu erhalten, werden die Phasensprünge mittels

des in Kapitel 4.2.3 präsentierte Linien-Algorithmus entfernt und die Messungen für unterschiedliche Linienlängen kombiniert. Für jede Versuchsreihe werden 10 Linienlängen zwischen 25 mm und 70 mm vermessen, wobei jede Linienlänge fünfmal wiederholt wird. Die Gangunterschiede der Einzelmessungen werden genutzt, um mittels einer linearen Regression die Stoffmengenkonzentration des Ethanol an der jeweiligen Pixelposition zu bestimmen. Details zu der Berechnungsmethode können den Kapiteln 4.1 und 4.2.4 entnommen werden.

Abbildung 5.2 zeigt auf der linken Seite die ermittelten Verteilungen der Stoffmengenkonzentration des Ethanoldampfs für die drei Versuchsreihen zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$ . Auf der rechten Seite der Abbildung werden exemplarisch die linearen Regressionen für drei Pixel (P1, P2 und P3) der jeweiligen Versuchsreihe präsentiert. Gemäß Gleichung (4.1) wird ein linearer Zusammenhang zwischen dem Gangunterschied und der Linienlänge erwartet. Diese Linearität wird von den vorliegenden Diagrammen über den gesamten Linienlängenbereich bestätigt. Aufgrund des linearen Zusammenhangs kann davon ausgegangen werden, dass die Phasensprünge mehrheitlich im Messbereich liegen und dementsprechend erfasst werden. Im *Phase Unwrapping* kommt es daher trotz des begrenzten Messbereichs zu keiner systematischen Unterschätzung des Gangunterschieds. Die Regressionsgerade des substratnahen Pixels P1 steigt für alle Versuchsreihen erwartungsgemäß am stärksten. Für die Versuchsreihe „N\_0“ befindet sich das Pixel P1 etwa 0,2 mm über der Substratoberfläche und die Konzentration an der entsprechenden Stelle liegt bei etwa  $0,93 \text{ mol m}^{-3}$ . Die Steigung der Regressionsgeraden und demnach die Konzentration fällt für darüberliegende Pixel stark ab, sodass die Konzentration des Pixels P3 in einer Höhe von etwa 8 mm über der Substratoberfläche nur noch etwa  $0,11 \text{ mol m}^{-3}$  beträgt. Die maximal ermittelte Stoffmengenkonzentration liegt bei  $0,99 \text{ mol m}^{-3}$  und wird unmittelbar über der Substratoberfläche erreicht.

Die erwartete theoretische Stoffmengenkonzentration von Ethanol über dem binären Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch beträgt bei einer Fluidtemperatur von  $27,2^\circ\text{C}$  etwa  $1,31 \text{ mol m}^{-3}$ . Diese theoretische Stoffmengenkonzentration wurde mit Hilfe der Antoine-Gleichung (vgl. Gleichung (2.6)), dem Raoult'schen Gesetz (vgl. Gleichung (2.8)), der allgemeinen Gasgleichung und den Versuchsparametern aus den Tabellen 4.1 und 4.2 berechnet. Eine Erhöhung beziehungsweise Senkung der Fluidtemperatur um  $1^\circ\text{C}$  führt zu einer theoretischen Stoffmengenkonzentration von  $1,38 \text{ mol m}^{-3}$  beziehungsweise  $1,24 \text{ mol m}^{-3}$ . Es ist daher unwahrscheinlich, dass die unzureichende Klimatisierung des Labors die Abweichung des ermittelten Werts vom theoretisch erwarteten Wert hervorruft. Erst eine Absenkung der Fluidtemperatur auf  $22^\circ\text{C}$  könnte die Abweichung vollständig erklären. Der Einfluss der Temperatur auf die ermittelten Lösungsmittelkonzentrationen wird in Kapitel 5.1.5 diskutiert.

Der theoretische Wert für die maximale Stoffmengenkonzentration wird für den initialen Ethanol-Massenanteil von 30 wt% beziehungsweise einem Stoffmengenanteil von  $\chi_{eth} = 0,366$  ermittelt. Die Verdunstung beginnt allerdings bereits während des Druckprozesses, der etwa 55 s dauert. Außerdem wird das bedruckte Substrat nach dem Druckvorgang innerhalb von 15 s in die Messposition im Interferometer bewegt. Die Bewegungen des Substrats erzeugen dabei Luftströmungen über dem gedruckten Fluidfilm, sodass die Verdunstung teilweise verstärkt wird. Die Stoffmengenkonzentration von Ethanol in dem binären Gemisch ist zum Zeitpunkt der Bildaufnahmen nicht bekannt. Sie wird jedoch

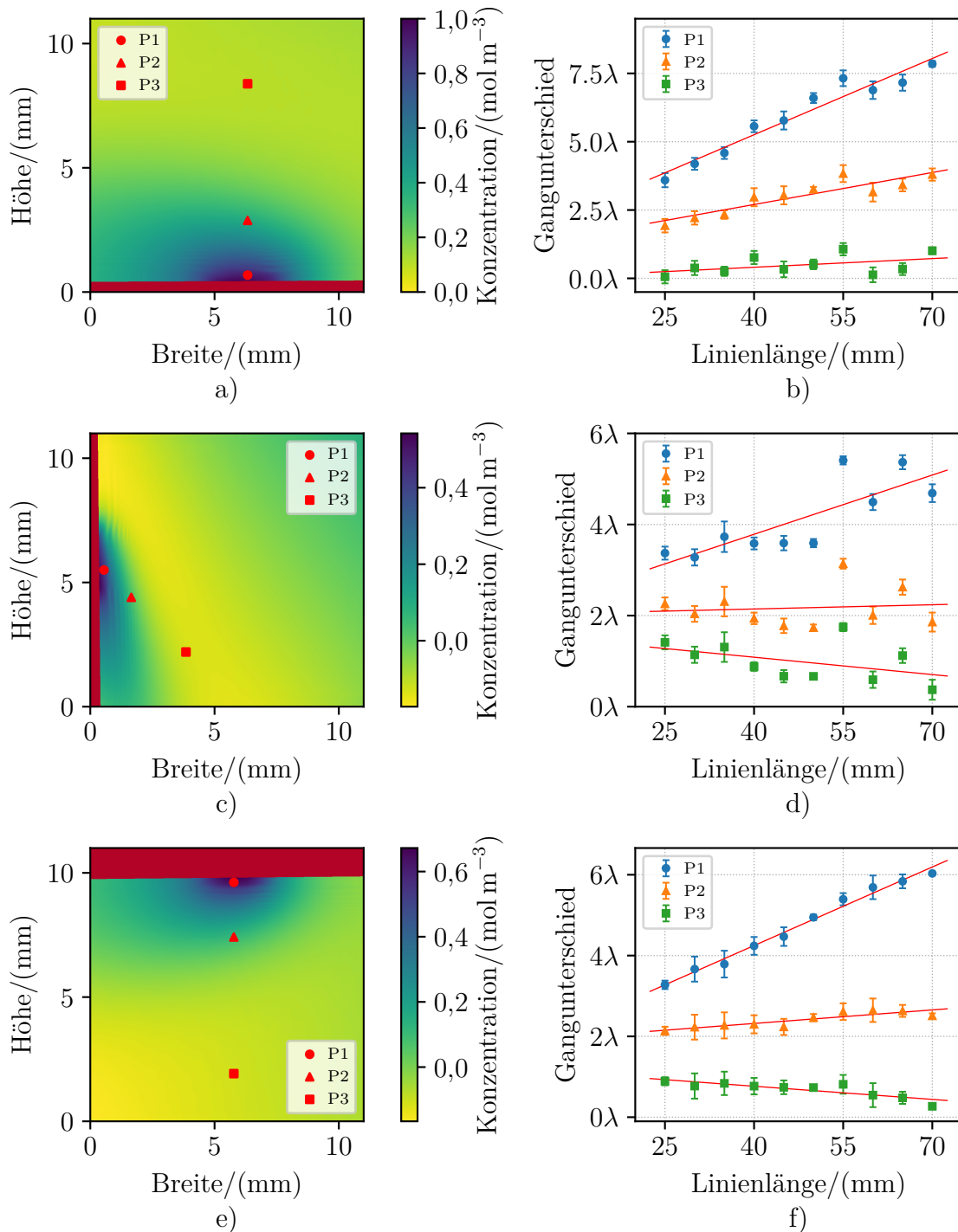


Abbildung 5.2: Die Abbildung zeigt die ermittelte Verteilung der Stoffmengenkonzentration des Ethanoldampfs über einer verdunstenden Linie zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  für die Versuchsreihe „N\_0“ (a), für die Versuchsreihe „N\_90“ (c) und für die Versuchsreihe „N\_180“ (e). Die rechte Seite der Abbildung zeigt die lineare Regression für drei exemplarische Pixel für die Versuchsreihe „N\_0“ (b), für die Versuchsreihe „N\_90“ (d) und für die Versuchsreihe „N\_180“ (f). Die lineare Regression wird genutzt, um die Stoffmengenkonzentration an der entsprechenden Pixelposition zu ermitteln. Die Positionen der exemplarischen Pixel werden jeweils auf der linken Seite durch die roten Symbole gekennzeichnet.



unter der initialen Stoffmengenkonzentration liegen, sodass ein Teil der Abweichung des ermittelten Werts vom theoretisch erwarteten Wert hierdurch erklärt werden kann. Bei einer Fluidtemperatur von  $27,2^\circ\text{C}$  müsste der Stoffmengenanteil von Ethanol etwa bei  $\chi_{eth} = 0,278$  liegen, um die Abweichung der maximal ermittelten Stoffmengenkonzentration in der Versuchsreihe „N\_0“ von der theoretisch erwarteten Stoffmengenkonzentration vollständig zu erklären.

Die bereits einsetzende Verdunstung vor der Bildaufnahme und die damit einhergehende Abnahme des Stoffmengenanteils von Ethanol in der gedruckten Linie stellt voraussichtlich auch für die Versuchsreihe „N\_90“ den hauptsächlichen Grund dafür dar, dass die ermittelten Stoffmengenkonzentrationen geringer ausfallen. Die maximal ermittelte Stoffmengenkonzentration für den Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  liegt etwa bei  $0,54 \text{ mol m}^{-3}$  und weicht damit deutlich von der erwarteten Stoffmengenkonzentration von  $1,18 \text{ mol m}^{-3}$  bei  $25,3^\circ\text{C}$  ab. Im Vergleich zur Versuchsreihe „N\_0“ wird bei der Versuchsreihe „N\_90“ eine erhöhte Verdunstungsrate erwartet, sodass bereits zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  ein geringerer Stoffmengenanteil im Fluid und demnach eine geringere Stoffmengenkonzentration über der gedruckten Linie vorgefunden wird. In der vertikalen Substratneigung kann die mit Lösungsmittel angereicherte Luft nach unten abfließen und von oben strömt Lösungsmittelarme Luft nach. Die erhöhte Verdunstungsrate wird von der zuvor präsentierten zeitlichen Entwicklung der Phasenverschiebungsverteilung (vgl. Abbildung 5.1 b) sowie von nachfolgenden Daten (vgl. Abbildung 5.5) bestätigt.

Neben der geringer ausfallenden maximalen Stoffmengenkonzentration weisen die Werte der Stoffmengenkonzentration der Versuchsreihe „N\_90“ teilweise negative Werte auf (vgl. Abbildung 5.2 c). Diese sind physikalisch unplausibel und treten auf, falls die Gangunterschiede für geringe Linienlängen überschätzt beziehungsweise die Gangunterschiede für längere Linien unterschätzt werden. Bei der Betrachtung der linearen Regressionen in Abbildung 5.2 d) wird deutlich, dass die Werte für Linienlängen ab etwa 55 mm von der Linearität abweichen. Dies könnte auf Phasensprünge außerhalb des Messbereichs hindeuten, sodass der Gangunterschied im *Phase Unwrapping* teilweise unterschätzt wird. Für die Einordnung negativer Konzentrationen könnte außerdem die Messreihenfolge innerhalb einer Versuchsreihe relevant sein. Die Einzelmessungen wurden in abnehmender Linienlänge aufgezeichnet, das heißt zunächst wurden die Interferogramme der langen Linien und zum Schluss die der kurzen Linien aufgenommen. Eine typische Versuchsreihe dauerte etwa vier Stunden, sodass ein Temperaturtrend innerhalb einer Versuchsreihe oder eine geringe Verstellung des Interferometers gegenüber der „Interferenzreferenz mit Substrat“ ebenfalls die Steigung der linearen Regressionen beeinflussen und damit zu einer Erhöhung oder Senkung der ermittelten Stoffmengenkonzentrationen führen könnte. Diesem Effekt könnte entgegengewirkt werden, indem die Reihenfolge der Aufzeichnung der Interferogramme randomisiert würde. Für eine tiefergehende Diskussion der negativen Stoffmengenkonzentrationen sei an dieser Stelle erneut auf die Betrachtung der Temperatureffekte in Kapitel 5.1.5 verwiesen.

Die Ergebnisse der Versuchsreihe „N\_180“ in Abbildung 5.2 e) und f) weisen keine weiteren Effekte auf, das heißt die Erläuterungen für die Versuchsreihen „N\_0“ und „N\_90“ gelten hier analog. Die Linearität der exemplarischen Pixel ist sehr gut, wobei erneut negative Werte für die Stoffmengenkonzentration auftreten. Die maximal ermittelte Stoffmengenkonzentration liegt bei  $0,67 \text{ mol m}^{-3}$ . Die erwartete theoretische Stoffmengenkonzentration liegt

für den initialen Ethanol-Massenanteil und die mittlere Raumtemperatur der Versuchsreihe von 26,2 °C bei 1,24 mol m<sup>-3</sup>.

### 5.1.3 Zeitlicher Verlauf der Stoffmengenkonzentration

Zusätzlich zu dem eben diskutierten Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  wurden die Verteilungen der Stoffmengenkonzentration für weitere 59 Aufnahmezeitpunkte ermittelt. Die insgesamt 60 Bildaufnahmen wurden über einen Zeitraum von 23,6 s in einem jeweiligen Abstand von 0,4 s aufgenommen. Die Abbildung 5.3 zeigt den zeitlichen Verlauf der Stoffmengenkonzentration sowie in der unteren Hälfte den daraus berechneten Diffusionsstrom für die Versuchsreihe „N\_0“. Aus Darstellungsgründen wird nur jede elfte Stoffmengenkonzentration und der korrespondierende Diffusionsstrom gezeigt. Die entsprechenden zeitlichen Verläufe für die Versuchsreihen „N\_90“ und „N\_180“ sind im Anhang in den Abbildungen A.1 beziehungsweise A.2 dargestellt. Aus dem oberen Bereich der Abbildung 5.3 wird deutlich, dass die Stoffmengenkonzentration über der gedruckten Linie mit fortschreitender Verdunstungszeit kontinuierlich abnimmt. Die maximal ermittelte Konzentration fällt von anfänglich 0,99 mol m<sup>-3</sup> auf 0,71 mol m<sup>-3</sup> nach 22,4 s ab. Die gestrichelten, roten Linien stellen Linien konstanter Konzentration dar und wurden für die Werte 0,2 mol m<sup>-3</sup>, 0,4 mol m<sup>-3</sup>, 0,6 mol m<sup>-3</sup> und 0,8 mol m<sup>-3</sup> eingezeichnet. Die Linien konstanter Konzentration verhalten sich ähnlich wie die Phasensprünge in den Phasenverschiebungsverteilungen in Abbildung 5.1, das heißt sie bewegen sich mit fortschreitender Verdunstungszeit in Richtung der Fluidoberfläche und verschwinden dort.

Um den Diffusionsstrom zu berechnen, wurde der räumliche Gradient der jeweiligen Konzentrationsverteilung berechnet und mit dem Diffusionskoeffizienten von Ethanol in Luft  $D_{\text{eth,l}} = 1,32 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  (Lapuerta, Hernández und Agudelo, 2014) multipliziert. Für die Darstellung des Diffusionsstroms in Abbildung 5.3 wurde die Auflösung der Konzentrationsverteilung vor der Berechnung des Gradienten auf 55 px × 55 px beziehungsweise 5 px mm<sup>-1</sup> reduziert. Aus Darstellungsgründen wird horizontal nur jeder dritte Pfeil, vertikal jeder sechste Pfeil dargestellt. Die erste Pfeilreihe befindet sich etwa 0,4 mm über dem Substrat. Um die Vergleichbarkeit zu erhöhen, wurden die rot gestrichelten Linien konstanter Konzentration aus der oberen Hälfte der Abbildung übernommen. Erwartungsgemäß steht die Richtung des Diffusionsstroms senkrecht auf diesen Linien.

Der maximale Diffusionsstrom zum Zeitpunkt  $t = 0$  in Höhe von 7,3 mmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> nimmt innerhalb von 23,6 s auf etwa 4,5 mmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> ab. Der maximale Diffusionsstrom wird unmittelbar über der verdunstenden Linie erreicht. Es gilt hierbei zu beachten, dass es sich ausschließlich um den diffusiven Anteil des gesamten Stofftransports handelt. Der konvektive Anteil des Stofftransports kann mit der vorliegenden Messmethode nicht bestimmt werden. In der Nähe der Grenzfläche zwischen dem gedruckten Lösungsmittelfilm und der umgebenden Luft nehmen die Luftströmungen und dementsprechend der konvektive Stofftransport ab. Vernachlässigt man Strömungen an der Oberfläche des Fluidfilms, so ist die Strömungsgeschwindigkeit der Luft an der Grenzfläche aufgrund der Haftbedingung der Strömungsmechanik gleich null. In diesem Fall ist der Stofftransport an der Grenzfläche rein diffusiv und die Verdunstungsrate des Fluidfilms räumlich quantifizierbar. Eine räumlich hochaufgelöste Darstellung des Diffusionsstroms in der Nähe der Grenzfläche ist daher

relevant für das Verständnis der Verdunstung gedruckter Fluidfilme. Diese hochaufgelöste Darstellung wird in Abbildung 5.5 für die drei Versuchsreihen gezeigt und in Kapitel 5.1.4 diskutiert.

Um die zeitliche Entwicklung der Stoffmengenkonzentration der einzelnen Versuchsreihen miteinander zu vergleichen, wird in Abbildung 5.4 die zeitliche Entwicklung von Konzentrationsprofilen dargestellt. Die Konzentrationsprofile wurden erstellt, indem zwei Schnitte durch die Stoffmengenkonzentrationen gelegt wurden. Für die Konzentrationsprofile der linken Seite der Abbildung wurde ein Schnitt senkrecht zu dem Substrat gelegt, der ungefähr durch die Mitte des Fluidfilms verläuft. Die Bereiche des Schnitts, die durch das Substrat verlaufen, werden rot hinterlegt. Für die Konzentrationsprofile der rechten Seite wurde der Schnitt parallel zu der Substratoberfläche und möglichst nah an das Substrat gelegt. Die erste Reihe der Abbildung zeigt die Konzentrationsprofile der Versuchsreihe „N\_0“, die mittlere Reihe zeigt die Konzentrationsprofile der Versuchsreihe „N\_90“ und die untere Reihe zeigt die Konzentrationsprofile der Versuchsreihe „N\_180“. Insgesamt zeigen alle Diagramme eine kontinuierliche Abnahme der Konzentration mit zunehmender Verdunstungszeit.

Vergleicht man die Konzentrationsprofile auf der linken Seite so fällt auf, dass die Lösungsmittelgrenzschicht, die sich über dem verdunstenden Fluidfilm bildet, für die Versuchsreihe „N\_0“ höher ist als für die beiden anderen Versuchsreihen. Während die Konzentration bei der Versuchsreihe „N\_0“ innerhalb von 1,9 mm auf die Hälfte der Maximalkonzentration abgefallen ist, ist die Konzentration der Versuchsreihe „N\_90“ bereits in einem Abstand von etwa 0,5 mm auf die Hälfte abgefallen. Die Konzentration der Versuchsreihe „N\_180“ fällt etwa innerhalb von 1,2 mm auf die Hälfte der Maximalkonzentration ab. Die absoluten Werte für die Höhe der Lösungsmittelgrenzschicht sind aufgrund der auftretenden negativen Konzentrationswerte unzuverlässig beziehungsweise ungenau. Dennoch ist der beobachtete relative Effekt physikalisch plausibel und auf den Einfluss natürlicher Konvektion zurückzuführen. Da die mit Lösungsmittel gesättigte Luft schwerer ist als die umgebende Luft, sinkt sie ab. Für die Versuchsreihe „N\_0“ verhindert das Substrat ein unmittelbares Abfließen der gesättigten Luft und es entsteht eine vergleichsweise hohe Lösungsmittelgrenzschicht über der verdunstenden Linie. Für die Versuchsreihe „N\_180“ verdunstet der Fluidfilm kopfüber, sodass die gesättigte Luft mittig über dem Fluidfilm nach unten abfließen kann. Ungesättigte Luft kann in diesem Fall von links und rechts nachströmen. Für das vertikale Substrat in „N\_90“ strömt die gesättigte Luft über die rechte Seite des Fluidfilms nach unten und ungesättigte Luft strömt von oben nach. Da in diesem Fall die absinkende Luft über die gesamte Breite des Fluidfilms in eine Richtung fließt, sind die resultierenden Strömungsgeschwindigkeiten der Luft und dadurch der konvektive Stofftransport am größten. Da die gesättigte Luft effizient nach unten abfließt, ist die Höhe der Lösungsmittelgrenzschicht hier am geringsten.

Die Konzentrationsprofile auf der rechten Seite der Abbildung 5.4 zeigen einen horizontalen Schnitt durch die eben beschriebene Lösungsmittelgrenzschicht. Während die Konzentrationsprofile der Versuchsreihe „N\_0“ und „N\_180“ annähernd symmetrisch verlaufen, weisen die Konzentrationsprofile der Versuchsreihe „N\_90“ insbesondere für frühe Aufnahmezeitpunkte einen asymmetrischen Verlauf auf. Dies entspricht dem erwarteten Verhalten. Im Laufe der Verdunstung sinkt der Sättigungsdampfdruck von Ethanol und damit die Dichte der gesättigten Luft. Dadurch nimmt der konvektive Einfluss auf die

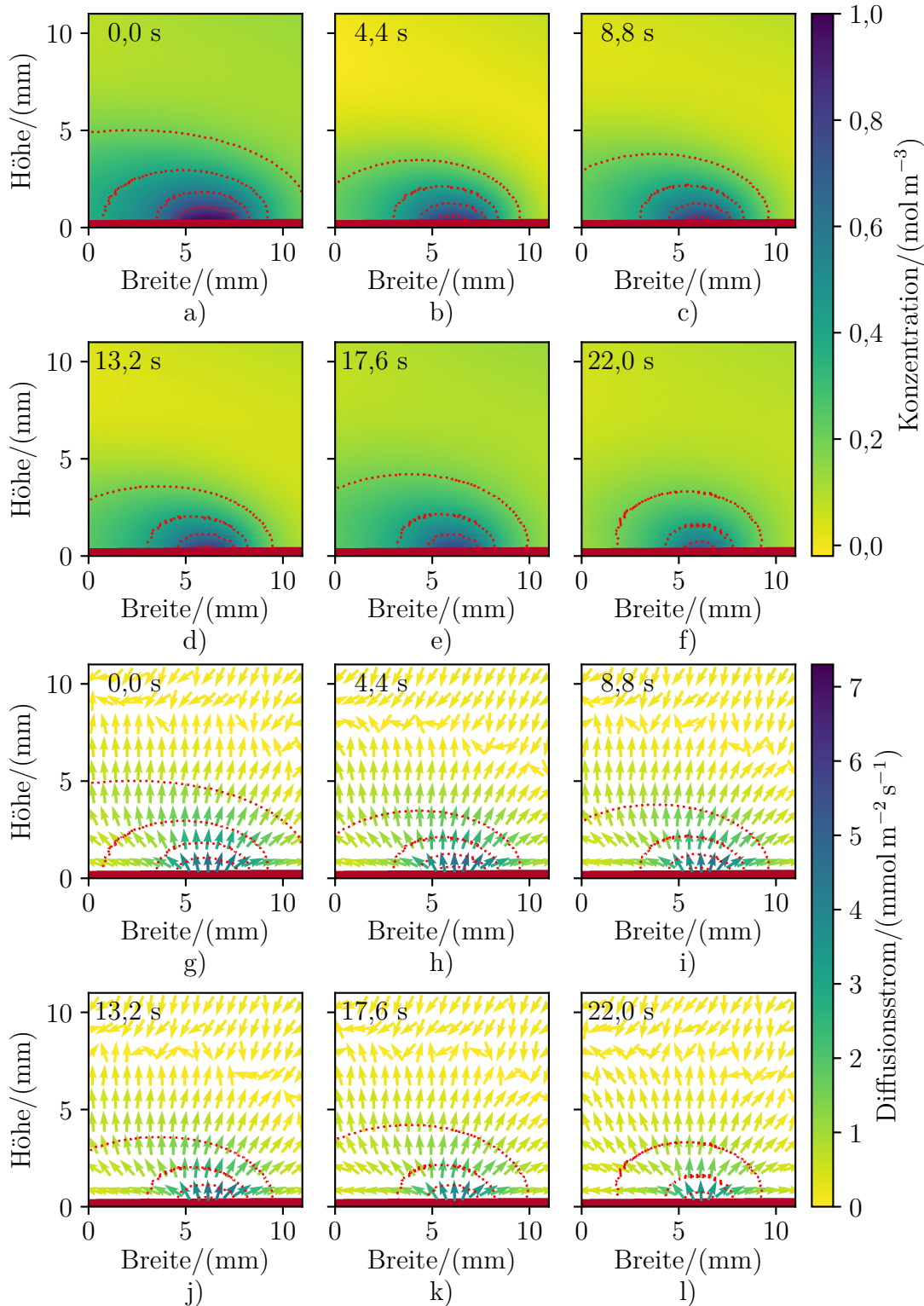


Abbildung 5.3: Die Abbildung zeigt die Ergebnisse der Versuchsreihe „N\_0“ beziehungsweise den zeitlichen Verlauf der Verteilung der Stoffmengenkonzentration über einer verdunstenden Linie (a-f), sowie den daraus berechneten Diffusionsstrom (g-l). Die 3 mm breite Linie befindet sich etwa mittig auf dem rot maskierten Substrat. Die gestrichelten, roten Linien stellen Linien konstanter Konzentration dar und wurden für die Werte  $0,2 \text{ mol m}^{-3}$ ,  $0,4 \text{ mol m}^{-3}$ ,  $0,6 \text{ mol m}^{-3}$  und  $0,8 \text{ mol m}^{-3}$  eingezeichnet.

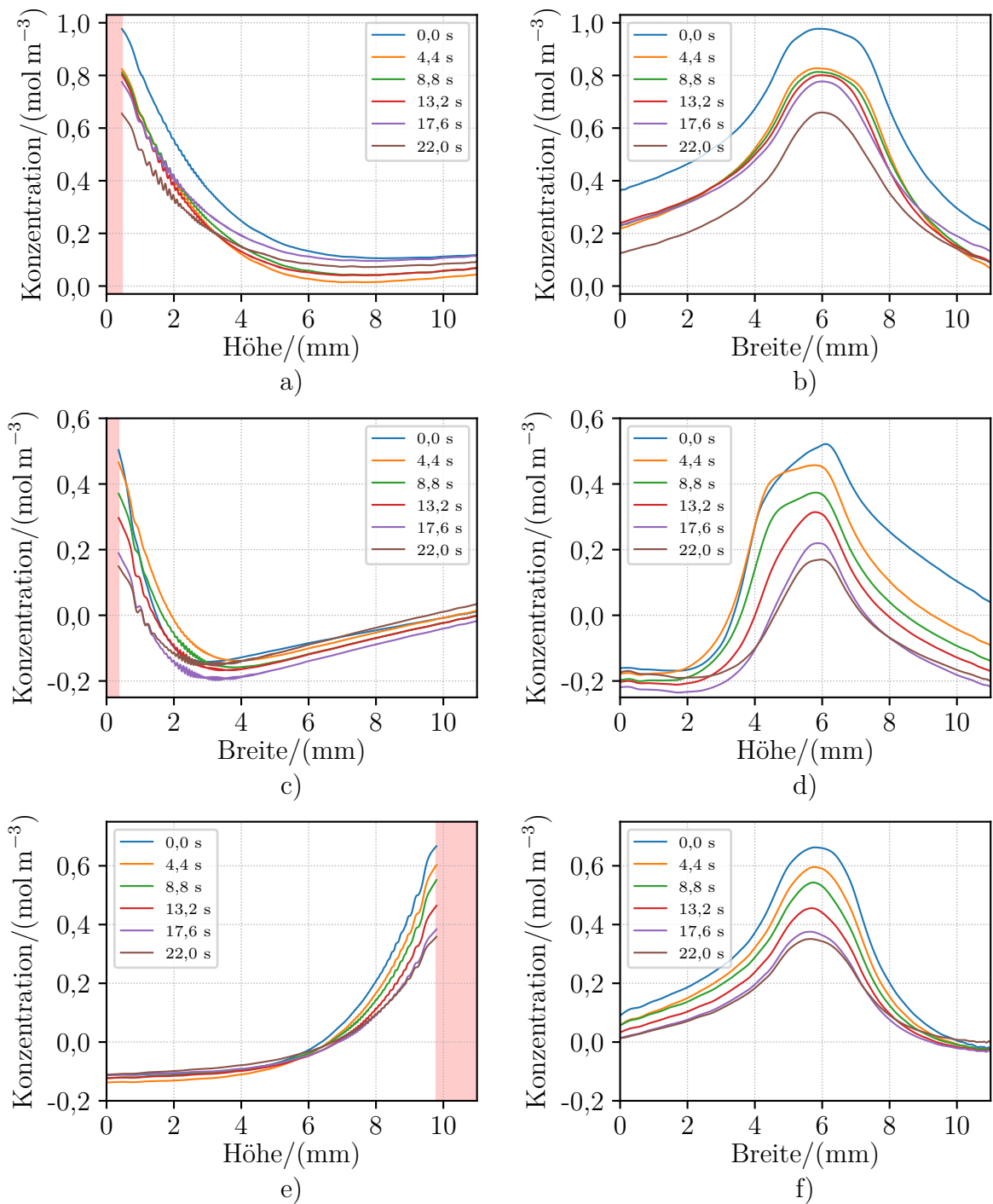


Abbildung 5.4: Dargestellt wird der zeitliche Verlauf zweier Konzentrationsprofile für die Versuchsreihe „N\_0“ (a, b), für die Versuchsreihe „N\_90“ (c, d) und für die Versuchsreihe „N\_180“ (e, f). Für die Konzentrationsprofile der linken Seite wurde ein Schnitt durch die Verteilung der Stoffmengenkonzentration gelegt, der senkrecht zu dem Substrat und ungefähr durch die Mitte des Fluidfilms verläuft. Die Bereiche des Schnitts, die durch das Substrat verlaufen, wurden rot hinterlegt. Für die Konzentrationsprofile der rechten Seite wurde der Schnitt parallel zu der Substratoberfläche und möglichst nah an das Substrat gelegt.

Lösungsmittelgrenzschicht ab und der diffusive Einfluss steigt. Die zunächst asymmetrischen Konzentrationsprofile der Versuchsreihe „N\_90“ werden im Laufe der Verdunstung sukzessive symmetrisch. Die Konzentrationsprofile der beiden anderen Versuchsreihen sind aufgrund des waagrechten Substrats symmetrisch und zudem weniger von konvektiven Strömungen beeinflusst. In Abbildung 5.4 b) wird deutlich, dass die Abstände zwischen den dargestellten Konzentrationsprofilen variieren. Die Abnahme der Konzentrationsprofile zwischen den Zeitpunkten 0,0 s und 4,4 s sowie zwischen 17,6 s und 22,0 s ist erhöht. Dies könnte auf eine zeitlich variable Verdunstungsrate zurückzuführen sein. Da dies allerdings von anderen Diagrammen nicht bestätigt wird, könnten die Abweichungen auch durch systematische Fehler im *Phase Unwrapping* der Phasenverschiebungsverteilungen hervorgerufen werden.

### 5.1.4 Betrachtung des Diffusionsstroms nahe der Phasengrenzfläche

Wie zuvor beschrieben, ist eine räumlich hochaufgelöste Darstellung des Diffusionsstroms in der Nähe der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit besonders relevant für das Verständnis der Verdunstung gedruckter Fluidfilme. Daher wird in Abbildung 5.5 der Diffusionsstrom parallel zur Substratoberfläche (x-Komponente), der Diffusionsstrom senkrecht zur Substratoberfläche (y-Komponente) sowie die Quadratwurzel der Summe der Quadrate beider Komponenten (Betrag des Diffusionsstroms) für die drei Versuchsreihen und den Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  gegenübergestellt. Die Diffusionsströme wurden jeweils für eine Pixelreihe („N\_0“ und „N\_180“) beziehungsweise Pixelspalte („N\_90“) berechnet, die etwa parallel zu der Substratoberfläche und in einem Abstand von etwa 0,1 mm zu der Substratoberfläche verläuft. Im Gegensatz zu den Abbildungen 5.3, A.1 und A.2 wurde die Auflösung der Konzentrationsverteilung vor der Berechnung des Gradienten nicht reduziert. Die Mitte der gedruckten Linie liegt für die drei Versuchsreihen aus experimentellen Gründen nicht an der gleichen Stelle des Messfensters, sodass die dargestellten Verläufe in der horizontalen Richtung relativ zueinander verschoben sind.

Bei der x-Komponente des Diffusionsstroms in Abbildung 5.5 a) lassen sich jeweils ein Maximum sowie ein Minimum identifizieren. Die Extrema liegen dabei jeweils an der Dreiphasenkontaktlinie, das heißt an der linken und rechten Kante des gedruckten Fluidfilms. Der Abstand der Extrema entspricht etwa der Linienbreite, also etwa 3 mm. Das Vorzeichen des Diffusionsstroms ist abhängig von der Richtung der x-Achse, jedoch für die beiden Kanten des Fluidfilms stets entgegengesetzt. In dem vorliegenden Fall zeigt die x-Achse für die Versuchsreihe „N\_0“ von links nach rechts, für die Versuchsreihe „N\_90“ von oben nach unten und für die Versuchsreihe „N\_180“ von rechts nach links (vgl. Abbildung 4.1). Während die Beträge der Extrema für die Versuchsreihen „N\_0“ und „N\_180“ etwa gleich hoch sind, ist das Minimum bei der Versuchsreihe „N\_90“ stärker ausgeprägt als das Maximum. Das Minimum der x-Komponente der Versuchsreihe „N\_90“ entspricht dem Diffusionsstrom, der an der oberen Kante des Fluidfilms nach oben gerichtet ist. Da gesättigte Luft nach unten abfließt und ungesättigte Luft von oben nachströmt, ist der Gradient der Konzentrationsverteilung und damit auch der Betrag des resultierenden Diffusionsstroms an der oberen Kante des Fluidfilms größer als an der unteren Kante.

Die y-Komponente des Diffusionsstroms in Abbildung 5.5 b) entspricht dem Anteil des

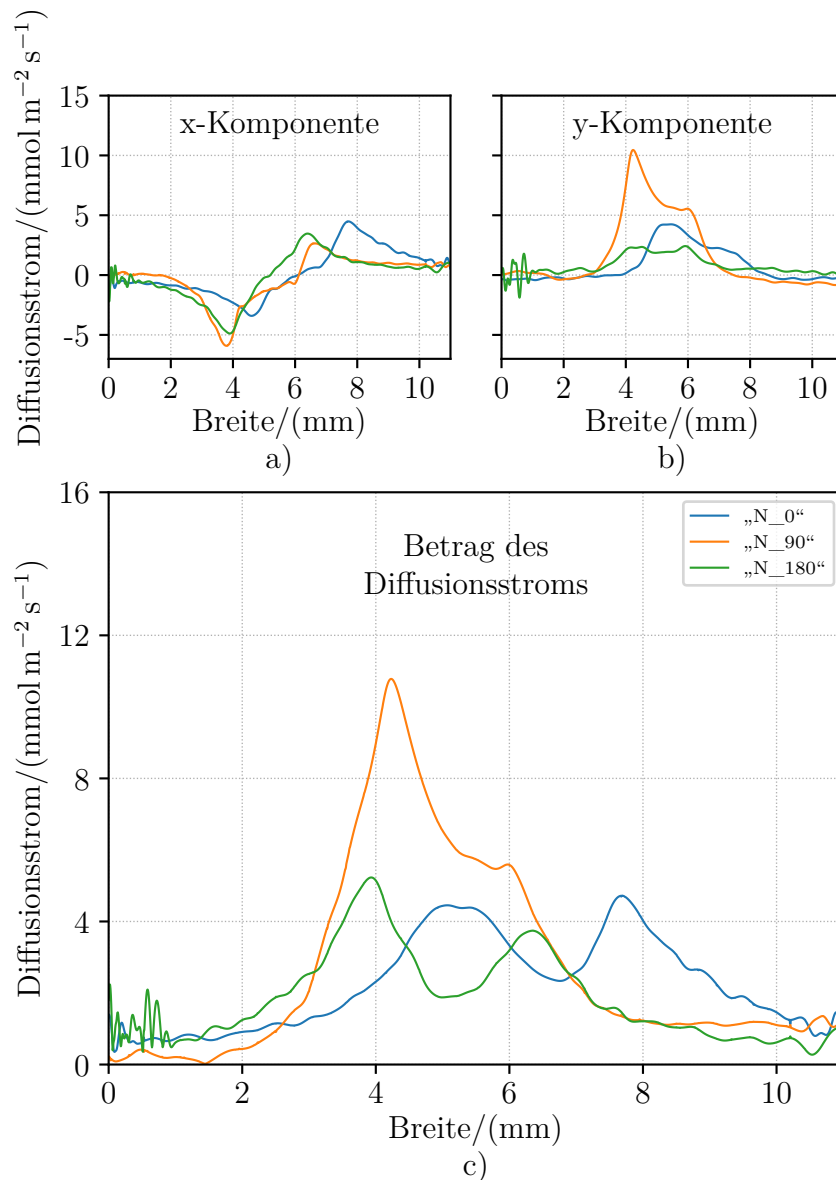


Abbildung 5.5: Dargestellt wird der Diffusionsstrom für die Versuchsreihen „N\_0“, „N\_90“ und „N\_180“ zum Zeitpunkt  $t = 0$ . Der Diffusionsstrom wurde für eine Pixelreihe beziehungsweise Pixelspalte, die etwa in einem Abstand von 0,1 mm parallel zu der Substratoberfläche verläuft, berechnet. Die x-Komponente stellt den Diffusionsstrom parallel zur Substratoberfläche (a) und die y-Komponente den Diffusionsstrom senkrecht zur Substratoberfläche (b) dar. Der Betrag des Diffusionsstroms stellt die Summe der Beträge beider Komponenten und damit eine Näherung für die lokale Verdunstungsrate entlang der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit dar (c).

Diffusionsstroms, der in Richtung der Flächennormalen der bedruckten Seite des Substrats abfließt. Auch in dieser Abbildung weisen die Werte der Versuchsreihe „N\_90“ einen asymmetrischen Verlauf auf. Dies ist erneut auf die natürliche Konvektion oberhalb des Fluidfilms zurückzuführen. Aufgrund der nachströmenden Luft von oben ist die Lösungsmittelgrenzschicht an der oberen Kante des Fluidfilms kleiner, sodass hier erneut ein größerer Konzentrationsgradient vorliegt. Die Werte der Versuchsreihe „N\_0“ verlaufen

ebenfalls leicht asymmetrisch. Dies kann nicht durch die natürliche Konvektion erklärt werden und ist daher voraussichtlich auf erzwungene Konvektion durch die Substrat- und Roboterbewegung zurückzuführen. Die y-Komponente des Diffusionsstroms der Versuchsreihe „N\_180“ verläuft symmetrisch über die Breite des Fluidfilms und weist eine geringe Randüberhöhung auf. Diese Randüberhöhung könnte auf Grenzschichtströmungen zurückzuführen sein, die von den beiden Kanten des Fluidfilms ausgehen und in Richtung der Fluidfilmmitte strömen. Verglichen mit der Verdunstung in aufrechter Substratposition würde dies eine erhöhte Verdunstungsrate an den Rändern hervorrufen. Diese erhöhte Verdunstungsrate ist ebenfalls in der Abbildung 5.5 c) sichtbar, kann allerdings nicht eindeutig identifiziert und einer Grenzschichtströmung zugeordnet werden. Für eine tiefergehende Untersuchung der Grenzschichtströmung müssten breitere Linien in der gleichen Substratneigung untersucht werden, da breitere Linien zu einer höheren Grashof-Zahl und damit zu einem erhöhten Einfluss der natürlichen Konvektion auf die Verdunstung des Fluidfilms führen.

Die Abbildung 5.5 c) zeigt den Betrag des Diffusionsstroms in einem Abstand von etwa 0,1 mm zum Substrat beziehungsweise zur Fluidfilmoberfläche. Der Diffusionsstrom in der Nähe der Fluidfilmoberfläche stellt eine Näherung für die lokale Verdunstungsrate entlang der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit dar, da der konvektive Stofftransport an der Phasengrenzfläche näherungsweise verschwindet. Es wird deutlich, dass der maximale Diffusionsstrom der Versuchsreihe „N\_90“ am höchsten ist, obwohl die maximal ermittelte Stoffmengenkonzentration des Ethanol dampfs für diese Versuchsreihe am geringsten ist. Der gesamte Stofftransport über die Breite des Fluidfilms beträgt für die Versuchsreihe „N\_0“ etwa  $9,3 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$ , für die Versuchsreihe „N\_90“ etwa  $18,6 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$  und für die Versuchsreihe „N\_180“ etwa  $8,8 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$ . Ermittelt wurde dieser, indem der Diffusionsstrom entlang eines Rechtecks über dem Fluidfilm mit dem jeweiligen Flächenvektor des Rechtecks multipliziert und anschließend aufsummiert wurde. Das gewählte Rechteck verläuft von unterhalb der Substratkante bis zu einer Höhe von etwa 0,1 mm über der Substratkante. Horizontal erstreckt sich das Rechteck von der Breite 1 mm bis zu der Breite 10 mm. Aufgrund des hohen Stofftransports beziehungsweise der hohen Verdunstungsrate der Versuchsreihe „N\_90“ ist die Verdunstung zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  bereits weiter fortgeschritten und dadurch die ermittelte Stoffmengenkonzentration in der Lösungsmittelgrenzschicht über dem gedruckten Fluidfilm geringer. Für die gewählte Liniengeometrie entspricht ein Stofftransport von  $18,6 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$  in etwa einer Verdunstungsrate von  $1,0 \text{ kg m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ . Akterian (2020) hat die Verdunstungsrate von organischen Lösungsmitteln in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit der Umgebungsluft gemessen. Für reines Ethanol ergeben sich Verdunstungsraten von  $2,6 \text{ kg m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  bis  $5,2 \text{ kg m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  bei Luftgeschwindigkeiten von  $0,1 \text{ m s}^{-1}$  bis  $1,5 \text{ m s}^{-1}$ . Unter Berücksichtigung des reduzierten Stoffmengenanteils des Ethanols im Druckfluid liegt der in dieser Arbeit bestimmte Wert in dem erwarteten Bereich und ist physikalisch plausibel.

Der Betrag des Diffusionsstroms weist für die Versuchsreihen „N\_0“ und „N\_180“ eine starke Randüberhöhung auf. Dies deutet darauf hin, dass die Verdunstung am Rand des Fluidfilms größer ist als in der Mitte des Fluidfilms. Diese räumlich inhomogene Verdunstung führt im funktionalen Drucken und bei weiteren industriellen Anwendungen zu Defekten. Würde man das vorliegende bildgebende Verfahren auf die Trocknung einer Lösung mit gelöstem Feststoff anwenden, so ließe sich beispielsweise die Randüberhöhung in der lokalen Verdunstungsrate mit der Stärke des *Coffee-Ring-Effects* korrelieren. Wie



zuvor erwähnt, könnte der Effekt bei der Versuchsreihe „N\_180“ stärker ausgeprägt sein als bei der Versuchsreihe „N\_0“. Um diesen Effekt genauer zu untersuchen bedarf es tiefergehender Untersuchungen mit breiteren Linien. Die bereits erwähnten Temperaturänderungen während der Messungen haben einen maßgeblichen Einfluss auf die bereits präsentierten Ergebnisse und werden daher im Folgenden diskutiert.

### 5.1.5 Betrachtung von Temperatureffekten

Das in Kapitel 4.2.4 beschriebene Vorgehen sowie die präsentierten Ergebnisse basieren auf einem isothermen Messprozess. Dies bedeutet, dass implizit angenommen wird, dass die Raumtemperatur, die Substrattemperatur sowie die Fluidtemperatur vor und während der Verdunstung die gleiche Temperatur besitzen. Andernfalls ergeben sich thermische Änderungen des Brechungsindex, thermisch bedingte Änderungen des Sättigungsdampfdrucks sowie thermische Konvektion, die die Stoffmengenkonzentration des Lösungsmitteldampfs über der verdunstenden Linie modifizieren. Im Folgenden werden die Einflüsse von drei potenziellen Quellen von Temperaturänderungen diskutiert: die Abkühlung des verdunstenden Fluidfilms aufgrund der Verdampfungsenthalpie, die Abkühlung während der Reinigung des Substrats sowie die Auswirkungen der unzureichenden Klimatisierung des Labors. Die verwendeten Stoffwerte von den Flüssigkeiten und Feststoffen wurden, sofern nicht anders angegeben, aus dem VDI-Wärmetlas entnommen (VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen, 2013).

Bezüglich der Abkühlung des verdunstenden Fluidfilms aufgrund der Verdampfungsenthalpie ist anzunehmen, dass die Fluidtemperatur in der Nähe des Substrats der Substrattemperatur entspricht, die Temperatur mit zunehmender Filmhöhe abnimmt und dass die Temperatur an der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit ihr Minimum erreicht. Da das Substrat aus einem massiven Aluminiumblock mit einer hohen Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit besteht und nur geringe Mengen Ethanol verdampfen, wird für diese Abschätzung das Substrat als Wärmebad angesehen, das heißt es stellt während der Verdunstung des Fluidfilms eine konstante und räumlich homogene Temperatur bereit. Um die absolute Abkühlung der Fluidfilmoberfläche gegenüber der Substrattemperatur abschätzen zu können, wird daher die Verdampfungsenthalpie von Ethanol mit der Wärmeleitfähigkeit des Fluids verglichen. Die Verdampfungsenthalpie von Ethanol liegt für 27,2 °C bei etwa 917 J g<sup>-1</sup> (Henke, Kadlec und Bubník, 2010). Der gesamte diffusive Stofftransport entlang der Fluidfilmoberfläche ermöglicht eine Abschätzung der Verdunstungsrate des Ethanols. Gemäß der in Kapitel 5.1.4 präsentierten Messungen beträgt die maximale Verdunstungsrate für die vorliegenden Fluidfilme etwa 1,0 kg m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>, sodass ein Wärmestrom von 254 W m<sup>-2</sup> benötigt wird, um die Verdunstung anzutreiben. Das Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch hat in etwa eine Wärmeleitfähigkeit von  $k_h = 0,22 \text{ W K}^{-1} \text{ m}^{-1}$ . Dieser Wert wurde mit Hilfe der Gleichung von Filippov und Novoselova (Gaitonde, Deshpande und Sukhatme, 1978)

$$k_h = k_{h,1}w_{m,1} + k_{h,2}w_{m,2} - 0.72 |k_{h,1} - k_{h,2}| w_{m,1}w_{m,2} \quad (5.1)$$

aus den Wärmeleitfähigkeiten der reinen Flüssigkeiten ( $k_{h,1}$  und  $k_{h,2}$ ) und den jeweiligen Massenanteilen ( $w_{m,1}$  und  $w_{m,2}$ ) berechnet. Die Wärmeleitfähigkeiten bei 20 °C betragen 0,169 W K<sup>-1</sup> m<sup>-1</sup> für reines Ethanol und 0,253 W K<sup>-1</sup> m<sup>-1</sup> für reines Ethylenglykol. Der

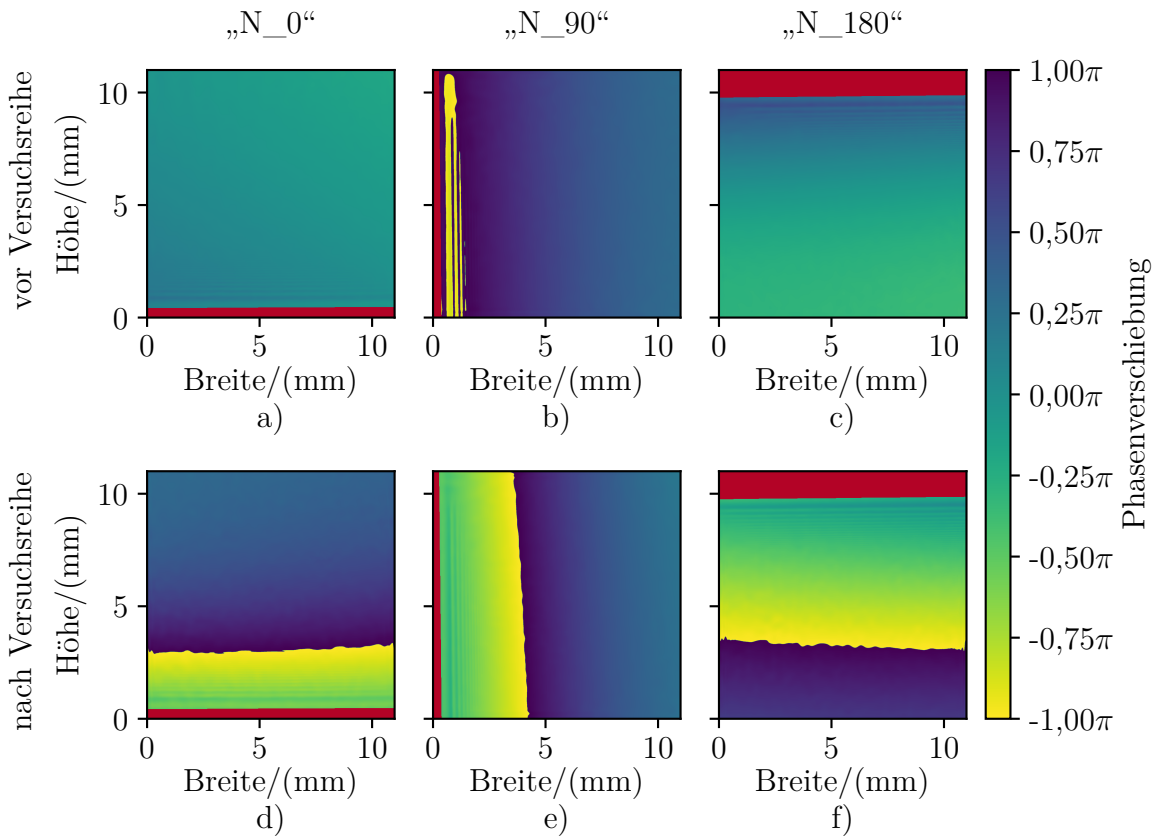


Abbildung 5.6: Gezeigt wird die durch das trockene Substrat hervorgerufene Phasenverschiebungsverteilung vor und nach der jeweiligen Versuchsreihe. Aufgrund der Reinigung kühlt das Substrat während der Versuchsreihen ab, sodass die Phasenverschiebungsverteilungen vor den Versuchsreihen (a - c) von den Phasenverschiebungsverteilungen nach den Versuchsreihen (d - f) abweichen.

Massenanteil des Ethanols im binären Gemisch beträgt etwa 30 wt% und der Massenanteil des Ethylenglykols etwa 70 wt%.

Teilt man den benötigten Wärmestrom durch die Wärmeleitfähigkeit des Ethylenglykol-Ethanol-Gemischs und multipliziert das Ergebnis mit der erwarteten Nassfilmdicke von etwa  $50\ \mu\text{m}$ , so ergibt sich eine Temperaturdifferenz von  $0,06\ \text{°C}$  zwischen der Fluidfilmoberfläche und der Substrattemperatur. Diese Abweichung ist vernachlässigbar klein, sodass die Abkühlung des verdunstenden Fluidfilms aufgrund der Verdampfungsenthalpie im Folgenden nicht weiter berücksichtigt wird.

Eine weitere Quelle von Temperaturänderungen stellt die Reinigung des Substrats dar, die zwischen jedem Druckversuch vorgenommen wird. Bei der Reinigung wird schätzungsweise 1 ml Aceton auf das Aluminiumsubstrat gegeben und die Rückstände des vorherigen Versuchs mithilfe von Reinraumtüchern entfernt. Es kann davon ausgegangen werden, dass eine erhebliche Menge des Acetons vom Reinraumtuch aufgenommen wird, sodass etwa 0,2 ml Aceton auf dem Substrat verbleiben und verdunsten. Aceton hat bei  $20\ \text{°C}$  eine Verdampfungsenthalpie von  $539,4\ \text{J g}^{-1}$  und eine Dichte von  $790,8\ \text{kg m}^{-3}$ , sodass insgesamt etwa 85 J benötigt werden, um das Aceton rückstandslos zu verdampfen. Aluminium hat bei  $0\ \text{°C}$  eine spezifische Wärmekapazität von  $837\ \text{J kg}^{-1}\ \text{K}^{-1}$ , sodass das gesamte Substrat

bei einer Dichte von etwa  $2700 \text{ kg m}^{-3}$  eine Wärmekapazität von etwa  $275 \text{ J K}^{-1}$  besitzt. Vergleicht man die Wärmekapazität des Substrats mit der zur Verdampfung des auf dem Substrat verbleibenden Acetons benötigten Wärme, so fällt auf, dass diese in der gleichen Größenordnung liegen. Ein einzelner Reinigungsvorgang reduziert gemäß vorliegender Abschätzung die Temperatur des Substrats um etwa  $0,3^\circ\text{C}$ . Insbesondere bei einer regelmäßigen Reinigung kann die Substrattemperatur daher erkennbar von der Raumtemperatur abweichen. Es ist davon auszugehen, dass sich die Substrattemperatur während einer Einzelmessung, die etwa drei Minuten dauert, teilweise an die Raumtemperatur angleicht. Es gilt zu beachten, dass der abgeschätzte Temperatureffekt stark von der geschätzten, verdunstenden Menge an Aceton abhängt, sodass der wahre Effekt stärker oder schwächer ausfallen kann.

Um den Abkühlungseffekt aufgrund der Reinigung des Substrats zu quantifizieren, wird die durch das trockene Substrat hervorgerufene Phasenverschiebung vor und nach jeder Versuchsreihe berechnet. Hierfür wird die Phasenverschiebung der „Interferenzreferenz“ von der Phasenverschiebung der „Interferenzreferenz mit Substrat“ abgezogen. Die Abbildung 5.6 zeigt die Ergebnisse vor und nach jeder Versuchsreihe. Es wird deutlich, dass das trockene Substrat deutliche Phasenverschiebungen hervorruft. Die Phasensprünge verlaufen dabei parallel zu der Substratoberfläche und werden voraussichtlich von einer Temperaturdifferenz zwischen der Raumluft und der Substrattemperatur beziehungsweise der Temperatur direkt über dem Substrat hervorgerufen. Insbesondere bei der Versuchsreihe „N\_0“ wird der Unterschied vor der Messreihe und nach der Messreihe deutlich. Da das Substrat vor dieser Messreihe lange nicht gereinigt wurde, stimmt die Substrattemperatur mit der Raumtemperatur überein und es gibt keine temperaturbedingte Phasenverschiebung. Während der Versuchsreihe wurde das Substrat mindestens 50-mal gereinigt, sodass die Substrattemperatur nach der Versuchsreihe aufgrund des Reinigungsprozesses unter der Raumtemperatur liegt. Aufgrund des kühleren Substrats ist die Luft direkt über dem Substrat kälter und damit deren Brechungsindex größer als der Brechungsindex der umgebenden Luft.

Die dargestellte Phasenverschiebung entspricht einem Gangunterschied von etwa  $0,75 \lambda$ . Solch ein Gangunterschied könnte bei den gegebenen Bedingungen durch eine Temperaturdifferenz von etwa  $1,9^\circ\text{C}$  hervorgerufen werden. Bei den übrigen Versuchsreihen ist der Effekt weniger stark ausgeprägt, da hier bereits vor der Aufzeichnung der Versuchsreihe Vorversuche inklusive Reinigungen des Substrats durchgeführt wurden und dadurch das Substrat bereits leicht gekühlt wurde. Es wird davon ausgegangen, dass die Temperaturdifferenz zwischen Substrat und Umgebungsluft während der Versuchsreihe in einem beschränkten Wertebereich unterhalb von  $2^\circ\text{C}$  bleibt. Insbesondere wird es im Laufe der Versuchsreihe zu einem gewissen Gleichgewichtszustand kommen. Blicke die Temperaturdifferenz über die gesamte Versuchsreihe hinweg konstant, würde sie die Linearität der linearen Regression und damit die Bestimmung der Dampfkonzentration über dem gedruckten Fluidfilm nicht beeinflussen. Die Temperaturabweichung sowie der eingebrachte Temperaturgradient beeinflussen allerdings die Höhe der Stoffmengenkonzentration, die natürliche Konvektion über der gedruckten Schicht sowie die präsentierten Phasenverschiebungsverteilungen. Die durch die Abkühlung des Substrats eingebrachten Messabweichungen könnten demnach einen Grund dafür darstellen, dass das zeitliche *Phase Unwrapping* die Reliabilität der bestimmten Gangunterschiede nicht erhöht (vgl. Kapitel 4.3.3).

Neben der Substrattemperatur konnte die Temperatur der Umgebungsluft nicht konstant gehalten werden. Eine unzureichende Klimatisierung des Labors führte dazu, dass die Temperatur während der Messungen kontinuierlich anstieg und die relative Luftfeuchtigkeit abnahm. Während der ungefähr vierstündigen Versuchsreihe „N\_0“ stieg die Temperatur innerhalb der Roboterzelle von anfänglich 26,7 °C auf 27,6 °C. Die relative Luftfeuchtigkeit fiel im gleichen Zeitraum von anfänglich 58,0 % auf 55,2 %, wobei der Partialdruck von Wasser in etwa konstant bei 2,03 kPa lag und daher den Brechungsindex der Luft kaum änderte. Für die Berechnung des Partialdrucks von Wasser wurde der Sättigungsdampfdruck von Wasser bei der entsprechenden Temperatur mit der Antoine-Gleichung (vgl. Gleichung (2.6)) berechnet und mit der relativen Luftfeuchtigkeit multipliziert. Durch den beschriebenen Anstieg der Lufttemperatur wird das Temperaturgleichgewicht aus Substrat, Fluid und Umgebungsluft gestört. Da sich der Temperaturanstieg jedoch über einen vierstündigen Zeitraum erstreckt, wird davon ausgegangen, dass sich keine signifikanten Temperaturdifferenzen der einzelnen Komponenten des experimentellen Aufbaus ergeben. Es wird vielmehr angenommen, dass sich die Fluidtemperatur sowie die Substrattemperatur analog zur Umgebungsluft erwärmen. Ein Anstieg der Fluidtemperatur führt zu einer Erhöhung der Stoffmengenkonzentration über dem binären Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch. Die erwartete theoretische Stoffmengenkonzentration erhöht sich von 1,27 mol m<sup>-3</sup> bei 26,7 °C auf etwa 1,34 mol m<sup>-3</sup> bei 27,6 °C. Da die Linien in abnehmender Länge vermessen werden, also zunächst die 70 mm langen Linien und zuletzt die 25 mm langen Linien gemessen werden, führt der Anstieg der Stoffmengenkonzentration zu einer relativen Erhöhung der Gangunterschiede für kleine Linienlängen. Dies stellt eine mögliche Erklärung für die negativen Konzentrationswerte bei den Ergebnissen der Versuchsreihen „N\_90“ und „N\_180“ dar. Außerdem kann die Änderung der Temperatur zu Veränderungen am Interferometer führen, sodass die zuletzt gemessenen Linien potenziell am weitesten von der vor der Versuchsreihe aufgezeichneten Referenz abweichen. Da die absoluten Gangunterschiede von den kurzen Linien gering sind, fallen bereits minimale Änderungen ins Gewicht. Ausgehend von den präsentierten Temperatureffekten ergeben sich Verbesserungsvorschläge für den vorliegenden experimentellen Aufbau, die nach der Diskussion der Ergebnisse in Kapitel 6 genannt werden.

## 5.2 Einfluss der Linienbreite

Im vorliegenden Kapitel wird der Einfluss der Linienbreite auf die Lösungsmittelatmosphäre über einer verdunstenden Linie evaluiert. Hierfür werden die Ergebnisse der Versuchsreihe „B\_0“ genutzt, in deren Rahmen die Interferogramme von fünf unterschiedlichen Linienlängen bei vier unterschiedlichen Linienbreiten aufgezeichnet wurden (vgl. Tabelle 4.2). Die Substratneigung beträgt durchgehend 0°, das heißt die Substratoberfläche verläuft waagrecht und die Flächennormale der bedruckten Seite des Substrats zeigt nach oben. Die gewählten Linienbreiten betragen 1,1 mm, 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm. Die Linienbreiten wurden in ansteigender Reihenfolge gedruckt, das heißt zunächst wurden die Linien mit einer Linienbreite von 1,1 mm und zuletzt die Linien mit einer Linienbreite von 11 mm untersucht. Die gesamte Versuchsreihe wurde ohne Unterbrechung innerhalb einer siebenstündigen Versuchsreihe aufgezeichnet, wobei die Temperatur der Umgebungsluft in der Roboterzelle von anfänglich 23,1 °C auf zuletzt 25,4 °C kontinuierlich angestiegen ist. Für die anfängliche Temperatur entsprechen die Linienbreiten Grashof-Zahlen von etwa 0,1;

1,1; 11,0 und 110,0, wobei die Grashof-Zahl mit ansteigender Linienbreite zunimmt. Es wird erwartet, dass für niedrige Grashof-Zahlen beziehungsweise geringe Linienbreiten der Stofftransport über der gedruckten Linie weitestgehend von der Diffusion dominiert wird. Für hohe Grashof-Zahlen, beziehungsweise breite Linien wird der Einfluss des konvektiven Stofftransports zunehmen.

Da die festgestellten Gangunterschiede bei den Linien mit einer Linienbreite von 1,1 mm im Vergleich zu den anderen Linienbreiten weitaus kleiner sind, musste die Auswertungsmethode daran angepasst werden. Aus diesem Grund werden die Ergebnisse der Linienbreite 1,1 mm separat am Ende des Kapitels dargestellt und zunächst die Ergebnisse der Linienbreiten 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm verglichen. Aufgrund der Substratführung des Roboters kam es in der vorliegenden Versuchsreihe zu einer Berührung von Substrat und dem optischen Käfigsystem des Interferometers. Als Folge dessen werden die ersten fünf Bildaufnahmen jeder Einzelmessung übersprungen und demnach der Aufnahmebeginn um etwa 2 s nach hinten verschoben. Eine Beeinflussung der nachfolgenden Ergebnisse konnte nicht festgestellt werden.

### 5.2.1 Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen

Die Abbildung 5.7 zeigt den zeitlichen Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen für die Linienbreiten 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm. Die Phasenverschiebungsverteilungen wurden mithilfe der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode aus den Interferogrammen der Versuchsreihe berechnet, wobei für die Linienbreite 2,4 mm ein Schwellwert von  $thr = 2000$ , für die Linienbreite 5,1 mm ein Schwellwert von  $thr = 1000$  und für die Linienbreite 11 mm ein Schwellwert von  $thr = 1500$  gewählt wurde (vgl. Kapitel 4.2.2 und 4.3.2).

Aus den Phasenverschiebungsverteilungen lassen sich im Wesentlichen zwei Schlussfolgerungen ziehen. Erstens treten bei den geringeren Linienbreiten weitaus weniger Phasensprünge auf. Das bedeutet, dass eine geringere Ethanolkonzentration in der Lösungsmittelatmosphäre über der gedruckten Linie vorhanden ist. Das liegt voraussichtlich daran, dass die Verdunstung für die geringeren Linienbreiten bereits weiter fortgeschritten ist, sodass der Massenanteil von Ethanol in dem binären Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch sowie der Sättigungsdampfdruck von Ethanol geringer sind. Die zweite Schlussfolgerung betrifft den Verlauf der einzelnen Phasensprünge. Während die Phasensprünge für die Linienbreite von 2,4 mm eine hohe Krümmung aufweisen, verlaufen die Phasensprünge bei der Linienbreite von 11 mm nahezu horizontal und liegen dichter beieinander. Wie bereits erwähnt wurde, liegt die Grashof-Zahl für die Linienbreite 2,4 mm bei etwa eins und die Grashof-Zahl für die Linienbreite 11 mm bei etwa 100. Für die breiteren Linien sind daher die Auftriebskräfte größer als die viskosen Kräfte, sodass der konvektive Stofftransport einen großen Einfluss auf die Lösungsmittelatmosphäre über der verdunstenden Linie hat. Die mit Lösungsmittel angereicherte Luft ist schwerer und sinkt nach unten. Das Substrat verhindert jedoch ein unmittelbares Abfließen der angereicherten Luft, sodass sich über dem Substrat eine Lösungsmittelgrenzschicht bildet, die breiter ist als die Breite des Fluidfilms. Für die Linienbreite 2,4 mm ist der Einfluss des konvektiven Stofftransports geringer, sodass sich weniger Lösungsmittel über dem Substrat ansammelt.

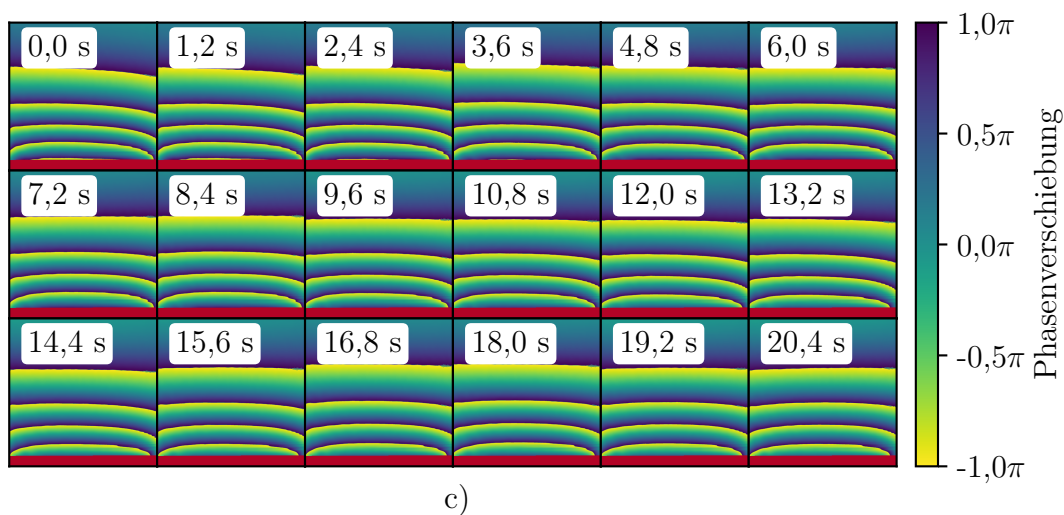
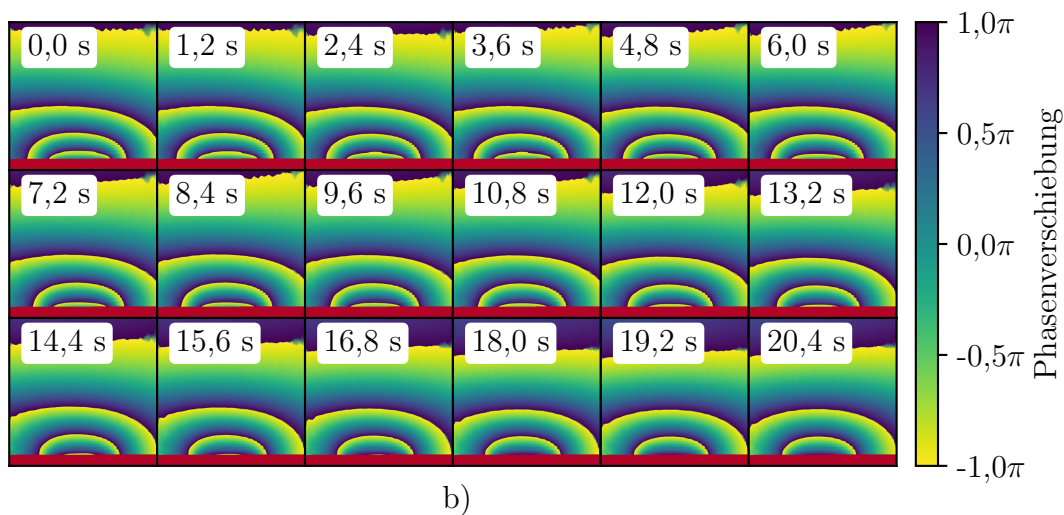
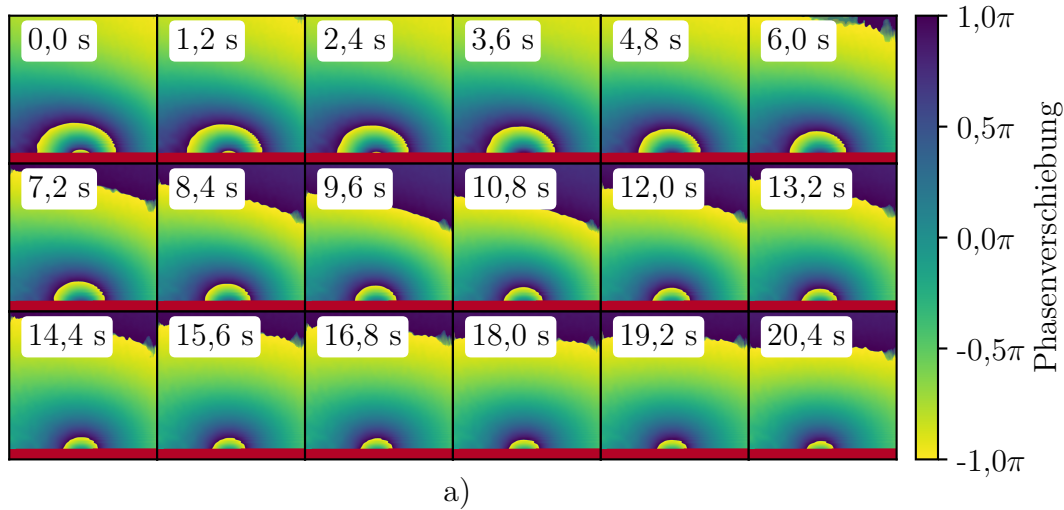


Abbildung 5.7: Dargestellt wird der zeitliche Verlauf von drei Phasenverschiebungsverteilungen mit unterschiedlichen Linienbreiten. Es handelt sich um Phasenverschiebungsverteilungen der Versuchsreihe „B\_0“ mit einer Linienbreite von 2,4 mm (a), 5,1 mm (b) und 11 mm (c). Die Linienlänge beträgt für alle Phasenverschiebungsverteilungen 70 mm.

### 5.2.2 Bestimmung der Stoffmengenkonzentration

Analog zu der Auswertung der vorherigen Versuchsreihen werden die Phasensprünge in den Phasenverschiebungsverteilungen mit dem Linien-Algorithmus entfernt. Anschließend werden die Gangunterschiede für unterschiedliche Linienlängen verglichen, um daraus eine Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich der gedruckten Linie zu erhalten. Die Abbildung 5.8 zeigt die ermittelten Konzentrationsverteilungen für die Linienlängen 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm für den Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$ . Außerdem werden jeweils auf der rechten Seite die linearen Regressionsgeraden für drei exemplarische Pixel dargestellt. Die Positionen der ausgewählten Pixel liegen in einer Höhe von etwa 0,1 mm, 2,3 mm und etwa 7,8 mm zentral über dem gedruckten Fluidfilm. Aus den Steigungen der linearen Regressionen wird gemäß Gleichung (4.1) der Unterschied im Brechungsindex und anschließend gemäß Gleichung (4.3) die Stoffmengenkonzentration für die jeweiligen Pixel berechnet. Die dargestellten Messwerte für die Gangunterschiede werden gut von dem linearen Modell approximiert, sodass die ermittelten Stoffmengenkonzentrationen weitestgehend als physikalisch plausibel eingestuft werden. Die negativen Stoffmengenkonzentrationen bei der Linienbreite von 5,1 mm werden voraussichtlich von einer Überschätzung der Gangunterschiede für kurze Linienlängen hervorgerufen (vgl. Kapitel 5.1.2). Insbesondere die Gangunterschiede bei einer Linienlänge von 25 mm wirken in Abbildung 5.8 d) leicht erhöht.

Die maximal ermittelte Stoffmengenkonzentration der Linienbreite 2,4 mm beträgt etwa  $0,6 \text{ mol m}^{-3}$ . Für den Zeitpunkt der durchgeführten Messungen lag die Temperatur der Umgebungsluft im Durchschnitt bei  $24,2^\circ\text{C}$ , sodass die theoretisch erwartete Stoffmengenkonzentration über dem initialen Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch bei etwa  $1,1 \text{ mol m}^{-3}$  liegt. Die Abweichung der experimentell ermittelten Stoffmengenkonzentration von dem theoretisch ermittelten Wert lässt sich auf einen abweichenden Massenanteil von Ethanol im Fluidfilm zum Zeitpunkt der Messung zurückführen. Eine Abnahme des Massenanteils von initial 30 wt% auf etwa 15 wt% zum Zeitpunkt der Messung könnte die Abweichung vollständig erklären.

Für die breiteren Linien von 5,1 mm und 11 mm liegen die maximal ermittelten Stoffmengenkonzentrationen bei  $1,0 \text{ mol m}^{-3}$  beziehungsweise  $1,3 \text{ mol m}^{-3}$ . Die mittlere Temperatur der Umgebungsluft während den Messungen lag bei  $24,6^\circ\text{C}$  beziehungsweise  $25,1^\circ\text{C}$ , sodass die theoretisch erwartete Stoffmengenkonzentration für das initiale Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch bei etwa  $1,1 \text{ mol m}^{-3}$  beziehungsweise  $1,2 \text{ mol m}^{-3}$  liegt. Die theoretisch erwarteten sowie die experimentell ermittelten Stoffmengenkonzentrationen stimmen demnach weitestgehend überein. Die zuvor diskutierte Abweichung aufgrund der Abnahme des Massenanteils von Ethanol im Fluidfilm ist für die breiteren Linien nicht feststellbar. Aufgrund der geringeren Flächendeckung schmaler Linien könnte die erzwungene Konvektion während des Druckvorgangs und während der Positionierung des Substrats einen größeren Einfluss auf die Verdunstung der schmalen Linie haben. Außerdem wirkt sich eine erhöhte Verdunstungsrate an den Rändern der Linie für geringe Linienbreiten stärker auf den Stoffmengenanteil des Ethanols in dem Fluidfilm aus.

Die Abbildung 5.9 zeigt einen direkten Vergleich der Konzentrationsprofile der Linienbreiten 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$ . Während die linke Seite einen vertikalen Schnitt durch die Verteilung der Stoffmengenkonzentration darstellt,

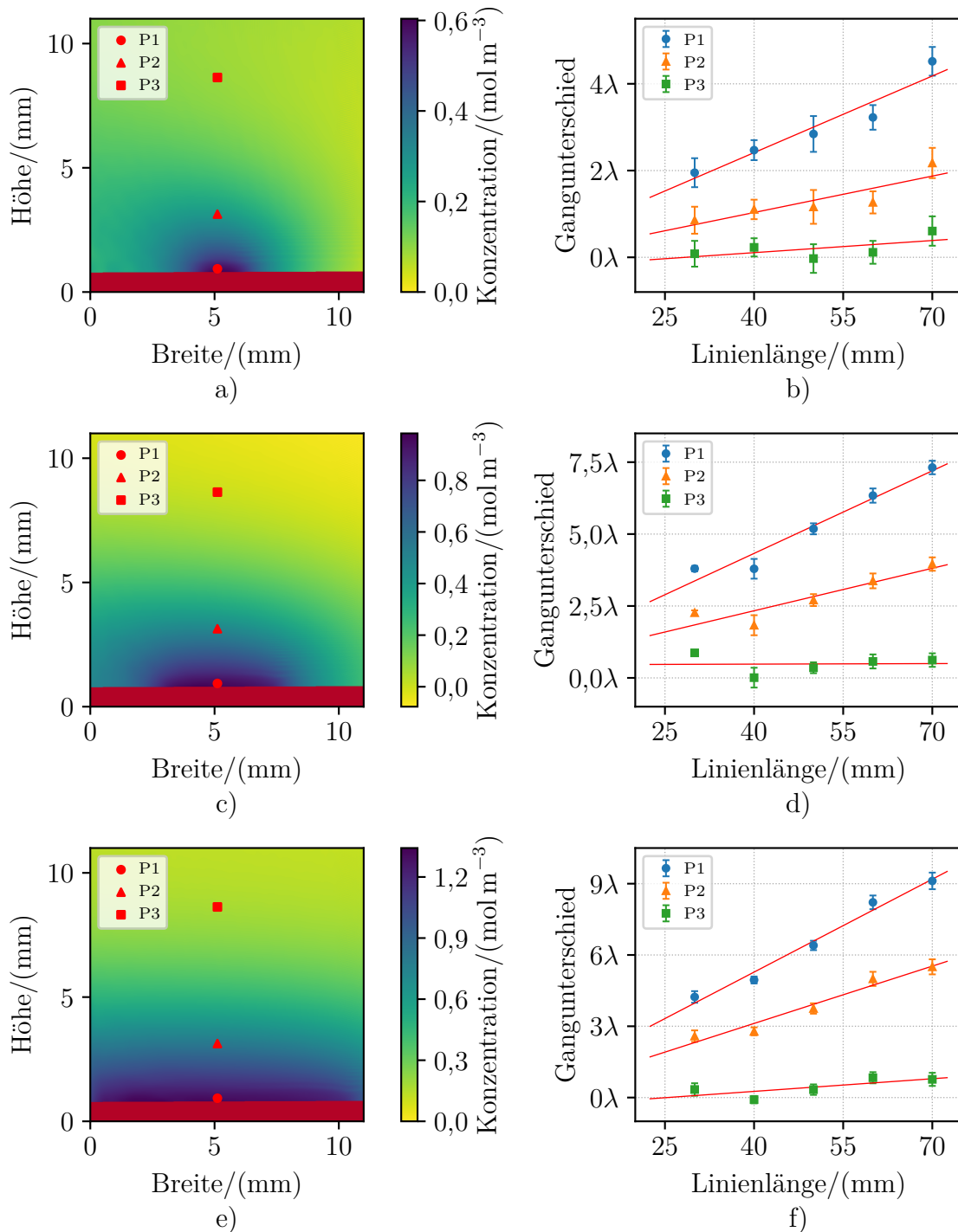


Abbildung 5.8: Dargestellt werden die Ergebnisse der Versuchsreihe „B\_0“ für eine Linienbreite von 2,4 mm (a, b), 5,1 mm (c, d) und 11 mm (e, f). Die linke Seite der Abbildung zeigt die ermittelte Verteilung der Stoffmengenkonzentration von Ethanol über einer gedruckten Linie zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$ . Die rechte Seite der Abbildung zeigt den gemessenen Gangunterschied an drei exemplarischen Pixelpositionen, aufgetragen gegen die Linienlänge. Die linearen Regressionsgeraden werden genutzt, um die Stoffmengenkonzentration an der jeweiligen Pixelposition zu berechnen. Die Positionen der exemplarischen Pixel der rechten Seite werden auf der linken Seite durch die roten Symbole gekennzeichnet.



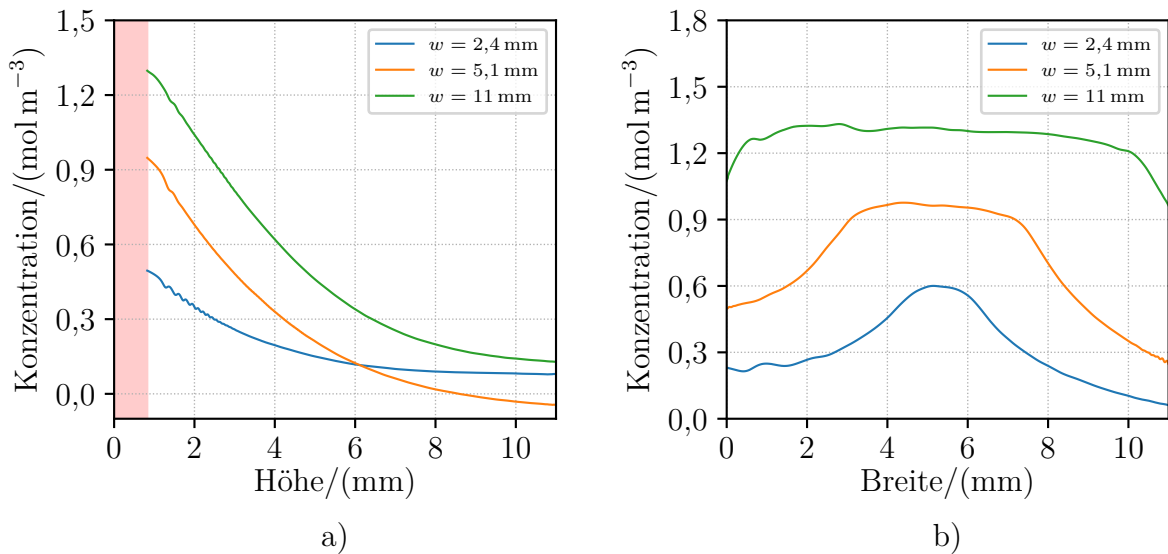


Abbildung 5.9: Die Abbildung zeigt einen Vergleich zweier Konzentrationsprofile für die Linienbreiten 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$ . Für die Konzentrationsprofile der linken Seite wurde ein Schnitt durch die Verteilung der Stoffmengenkonzentration gelegt, der senkrecht zu dem Substrat und ungefähr durch die Mitte des Fluidfilms verläuft (a). Die Bereiche des Schnitts, die durch das Substrat verlaufen, wurden rot hinterlegt. Für die Konzentrationsprofile der rechten Seite wurde der Schnitt parallel zu der Substratoberfläche und möglichst nah an das Substrat gelegt (b).

zeigt die rechte Seite einen horizontalen Schnitt knapp oberhalb der Substratkante. Um die Vergleichbarkeit zu gewährleisten, wurden die jeweiligen Schnitte für die einzelnen Linienbreiten durch die gleiche Stelle im Messbereich gelegt. Abbildung 5.9 verdeutlicht die bereits bei Abbildung 5.8 beschriebene Lösungsmitteldampfverteilung. Die maximal ermittelten Stoffmengenkonzentrationen nehmen mit abnehmender Linienbreite deutlich ab. Die horizontalen Profile veranschaulichen neben diesem Verhalten die Ausbildung eines Bereichs konstanter Stoffmengenkonzentration für breite Linien. Während bei einer Linienbreite von 2,4 mm die Stoffmengenkonzentration unmittelbar nach Erreichen der maximalen Stoffmengenkonzentration wieder abfällt, weist das Konzentrationsprofil der Linienbreite 11 mm einen Bereich von etwa 9 mm auf, in dem die Stoffmengenkonzentration weitestgehend konstant bleibt. Das hier dargestellte Plateau verläuft quer zu der gedruckten Linie. Es ist davon auszugehen, dass sich ein analoges Plateau entlang der Linie ausbildet, sodass die Annahmen für die Gleichung (4.1) aus Kapitel 4.1 bestätigt werden.

### 5.2.3 Zeitlicher Verlauf der Stoffmengenkonzentration

Die in Abbildung 5.8 dargestellten Verteilungen der Stoffmengenkonzentration werden für alle weiteren Aufnahmezeitpunkte der Versuchsreihe „B\_0“ bestimmt. Insgesamt handelt es sich um 55 Aufnahmezeitpunkte, wobei die 55 Bildaufnahmen über einen Zeitraum von 21,6 s in einem jeweiligen Abstand von 0,4 s aufgenommen wurden. Die Abbildung 5.10 zeigt den zeitlichen Verlauf der Stoffmengenkonzentration für die Linienbreite 5,1 mm

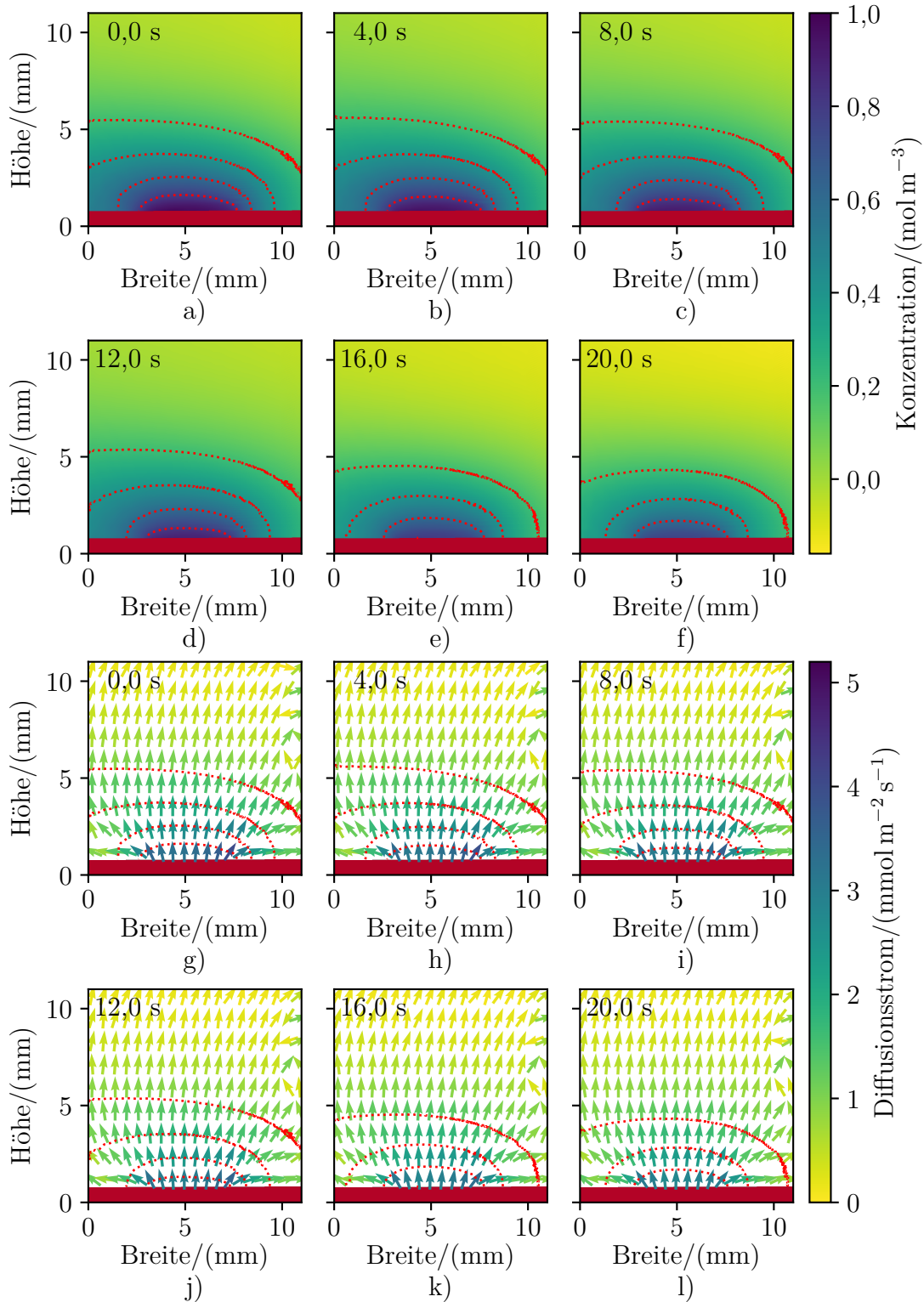


Abbildung 5.10: Die Abbildung zeigt den zeitlichen Verlauf der Verteilung der Stoffmengenkonzentration über einer 5,1 mm breiten, verdunstenden Linie (a-f) sowie den daraus berechneten Diffusionsstrom (g-l). Die verdunstende Linie befindet sich etwa mittig auf dem rot maskierten Substrat. Die gestrichelten, roten Linien stellen Linien konstanter Konzentration dar und wurden für die Werte  $0,2 \text{ mol m}^{-3}$ ,  $0,4 \text{ mol m}^{-3}$ ,  $0,6 \text{ mol m}^{-3}$  und  $0,8 \text{ mol m}^{-3}$  eingezeichnet.

sowie den daraus berechneten Diffusionsstrom. Aus Darstellungsgründen wird nur jede zehnte Stoffmengenkonzentration und der korrespondierende Diffusionsstrom gezeigt. Die analogen Darstellungen für die Linienbreiten 2,4 mm und 11 mm können den Abbildungen A.3 und A.4 im Anhang entnommen werden.

Der zeitliche Verlauf der Verteilung der Stoffmengenkonzentration zeigt ein ähnliches zeitliches Verhalten wie die Ergebnisse der vorherigen Versuchsreihen. Die maximale Stoffmengenkonzentration nimmt kontinuierlich ab und sinkt innerhalb von 21,6 s von anfänglich  $0,98 \text{ mol m}^{-3}$  auf  $0,76 \text{ mol m}^{-3}$ . Im Laufe der Verdunstung nehmen die negativen Stoffmengenkonzentrationen tendenziell zu. Somit kommt es insbesondere bei fortgeschrittener Verdunstung zu einer Überschätzung der Gangunterschiede kurzer Linien beziehungsweise zu einer Unterschätzung der Gangunterschiede langer Linien. Dies könnte auf die in Kapitel 5.1.5 diskutierte Abkühlung des Substrats oder einen Phasensprung außerhalb des Messfensters zurückzuführen sein. Bei bereits fortgeschrittener Verdunstung werden geringere Stoffmengenkonzentrationen über der gedruckten Linie erwartet, sodass bereits kleine systematische Abweichungen zu negativen Stoffmengenkonzentrationen führen können. Die ebenfalls in Abbildung 5.10 dargestellten Diffusionsströme wurden analog zu den Diffusionsströmen in Abbildung 5.3 berechnet. Der maximale Diffusionsstrom nimmt innerhalb von 21,6 s von anfänglich  $5,2 \text{ mmol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  auf  $3,5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  ab. Damit nimmt der Diffusionsstrom innerhalb des Messzeitraums um etwa 33 % ab, während die maximale Stoffmengenkonzentration um etwa 22 % abnimmt. Die überproportionale Abnahme des Diffusionsstroms könnte mit der Abnahme der Grashof-Zahl zusammenhängen. Da der Einfluss der natürlichen Konvektion bei geringeren Stoffmengenkonzentrationen geringer ausfällt, wird die Lösungsmittelgrenzschicht über dem gedruckten Fluidfilm weniger gestaucht und die Konzentrationsgradienten nehmen ab.

#### 5.2.4 Betrachtung des Diffusionsstroms nahe der Phasengrenzfläche

Für eine weitere Analyse des Diffusionsstroms und damit der Verdunstungsrate entlang der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit wird in Abbildung 5.11 der Diffusionsstrom für den Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  in Liniendiagrammen orts aufgelöst dargestellt. Die Werte werden analog zu Abbildung 5.5 berechnet, das heißt die Komponenten des Diffusionsstroms werden für eine Pixelreihe in einer Höhe von 0,1 mm über der Substratoberfläche berechnet. Die Werte der Konzentrationsverteilung wurden vor der Berechnung des Gradienten nicht geglättet, sodass an den Rändern des Messbereichs Abweichungen aufgrund von Randeffekten der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode sichtbar werden. Dennoch erlauben die vorliegenden Daten einen qualitativen Vergleich der Diffusionsströme für die einzelnen Linienbreiten. Anhand der Abbildung 5.11 a) wird deutlich, dass der horizontale Diffusionsstrom an den Rändern des Fluidfilms Extrema aufweist. Für die Linienbreite 11 mm entspricht die Linienbreite in etwa der Breite des Messfensters, sodass die Extrema nicht komplett abgebildet werden können. Insbesondere für die 5,1 mm und 11 mm breiten Linien bildet sich ein konstanter Bereich in der Mitte des Fluidfilms, in dem nahezu kein horizontaler Stofftransport festzustellen ist. Die Dampfdruckisobaren beziehungsweise die Linien konstanter Konzentration verlaufen in diesem Bereich parallel zu der Substratoberfläche. Vergleicht man die Profile des horizontalen Diffusionsstroms für unterschiedliche Linienbreiten, so fällt auf, dass die maximalen absoluten Werte der

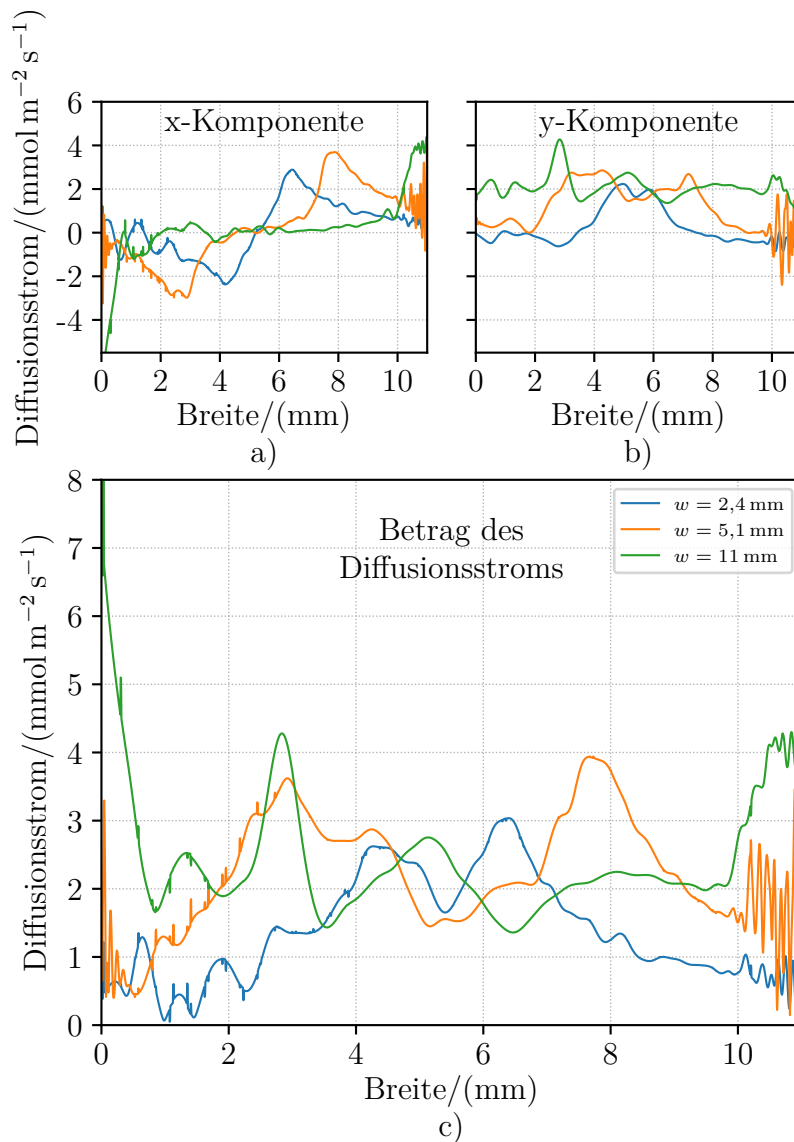


Abbildung 5.11: Dargestellt wird der Diffusionsstrom für die Linienbreiten 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm der Versuchsreihe „B\_0“ zum Zeitpunkt  $t = 0$ . Der Diffusionsstrom wurde für eine Pixelreihe berechnet, die etwa 0,1 mm über dem Substrat verläuft. Die x-Komponente stellt den horizontalen Diffusionsstrom (a) und die y-Komponente den vertikalen Diffusionsstrom (b) dar. Der Betrag des Diffusionsstroms (c) stellt die Summe der Beträge beider Komponenten und damit eine Näherung für die lokale Verdunstungsrate entlang der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit dar.

Extrema mit steigender Linienbreite zunehmen. Für höhere Linienbreiten ist der Anteil der natürlichen Konvektion stärker, sodass die konvektive Luftströmung die mit Lösungsmittel angereicherte Luft an den Rändern des Fluidfilms schneller abführt. Hierdurch steigt die Verdunstungsrate an den Rändern mit steigender Linienbreite an.

Die Profile des vertikalen Diffusionsstroms in Abbildung 5.11 b) weisen in der Mitte des Fluidfilms einen Bereich auf, in der der vertikale Diffusionsstrom nahezu konstant bleibt. Für alle drei Linienbreiten ist die Höhe dieses konstanten Bereichs etwa gleich, während

die Breite des konstanten Bereichs mit zunehmender Linienbreite größer wird. Dies ist abermals auf die Dampfdruckisobaren zurückzuführen, die in diesem Bereich parallel zu der Substratoberfläche verlaufen. Für die Linienbreiten 2,4 mm und 5,1 mm fällt der vertikale Diffusionsstroms außerhalb des konstanten Bereichs auf etwa null ab, für die Linienbreite 11 mm ist dies aufgrund des begrenzten Messfensters nicht festzustellen.

Der Betrag des Diffusionsstroms in Abbildung 5.11 c) entspricht der Quadratwurzel der Summe der Quadrate der x- und y-Komponenten. Er wurde ebenfalls für eine Pixelreihe in einer Höhe von 0,1 mm über der Substratoberfläche berechnet und stellt eine Näherung für die Verdunstungsrate entlang der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit dar. Die abgebildeten Profile weisen teilweise starke Randeffekte auf und die Werte fallen auch für die geringeren Linienbreiten jenseits des Fluidfilms nicht auf null ab. Dennoch wird davon ausgegangen, dass insbesondere der qualitative Vergleich der Messdaten zulässig ist. Der gesamte Stofftransport über die Breite des Fluidfilms beträgt für die Linienbreite 2,4 mm etwa  $3,2 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$  und für die Linienbreite 5,1 mm etwa  $13,0 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$ . Der gesamte Stofftransport wurde ermittelt, indem analog zu Kapitel 5.1.4 die Diffusionsrate entlang eines Rechtecks über dem Fluidfilm mit dem jeweiligen Flächenvektor des Rechtecks multipliziert und anschließend aufsummiert wurde. Das gewählte Rechteck verläuft in einer Höhe von 0,1 mm über dem Substrat und reicht von der Breite 1 mm bis zu der Breite 10 mm. Aufgrund des begrenzten Messfensters konnte der gesamte Stofftransport für die Linienbreite 11 mm nicht bestimmt werden. Die ermittelten Werte sind konsistent mit den zuvor bestimmten Werten, insbesondere hinsichtlich des Stofftransports von  $9,3 \mu\text{mol m}^{-1} \text{s}^{-1}$  von der 3 mm breiten Linie in der Versuchsreihe „N\_0“ (vgl. Kapitel 5.1.4). Teilt man den gesamten Stofftransport durch die entsprechende Linienbreite, so erhält man eine Näherung für die mittlere Verdunstungsrate entlang des Fluidfilms. Für die Linienbreite 2,4 mm erhält man eine mittlere Verdunstungsrate von etwa  $1,3 \text{ mmol m}^{-2} \text{s}^{-1}$  und für die Linienbreite 5,1 mm erhält man eine mittlere Verdunstungsrate von etwa  $2,5 \text{ mmol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ . Es ist davon auszugehen, dass die mittlere Verdunstungsrate der Linienbreite 11 mm noch höher liegt. Gemäß der vorliegenden Messdaten wird die höhere mittlere Verdunstungsrate hauptsächlich durch die verstärkte Verdunstung am Rand hervorgerufen. Wie bereits anhand der Profile der horizontalen Diffusionsströme diskutiert wurde, ist dies voraussichtlich auf den erhöhten Einfluss natürlicher Konvektion bei breiteren Linienbreiten zurückzuführen. Dieses Ergebnis bedeutet auch, dass sich potenzielle Trocknungsphänomene, die durch eine inhomogene Verdunstungsrate entlang der Oberfläche des Fluidfilms hervorgerufen werden, für breite Fluidfilme verstärkt auftreten.

### 5.2.5 Auswertung bei geringen Lösungsmittelkonzentrationen

Im Rahmen der Auswertung der Versuchsreihe „B\_0“ lagen die festgestellten Gangunterschiede für die Linienbreite 1,1 mm deutlich unter den Gangunterschieden der breiteren Linien. Aufgrund der geringen absoluten Gangunterschiede fallen statistische Abweichungen stärker ins Gewicht, sodass mithilfe der zuvor genutzten Auswertungsmethode aus den vorliegenden Gangunterschieden für unterschiedliche Linienlängen keine plausible Konzentrationsverteilung ermittelt werden konnte. Um dennoch eine Abschätzung für die Konzentrationsverteilung über einer 1,1 mm breiten Linie zu erhalten, wird das Auswertungsverfahren im Folgenden leicht modifiziert.

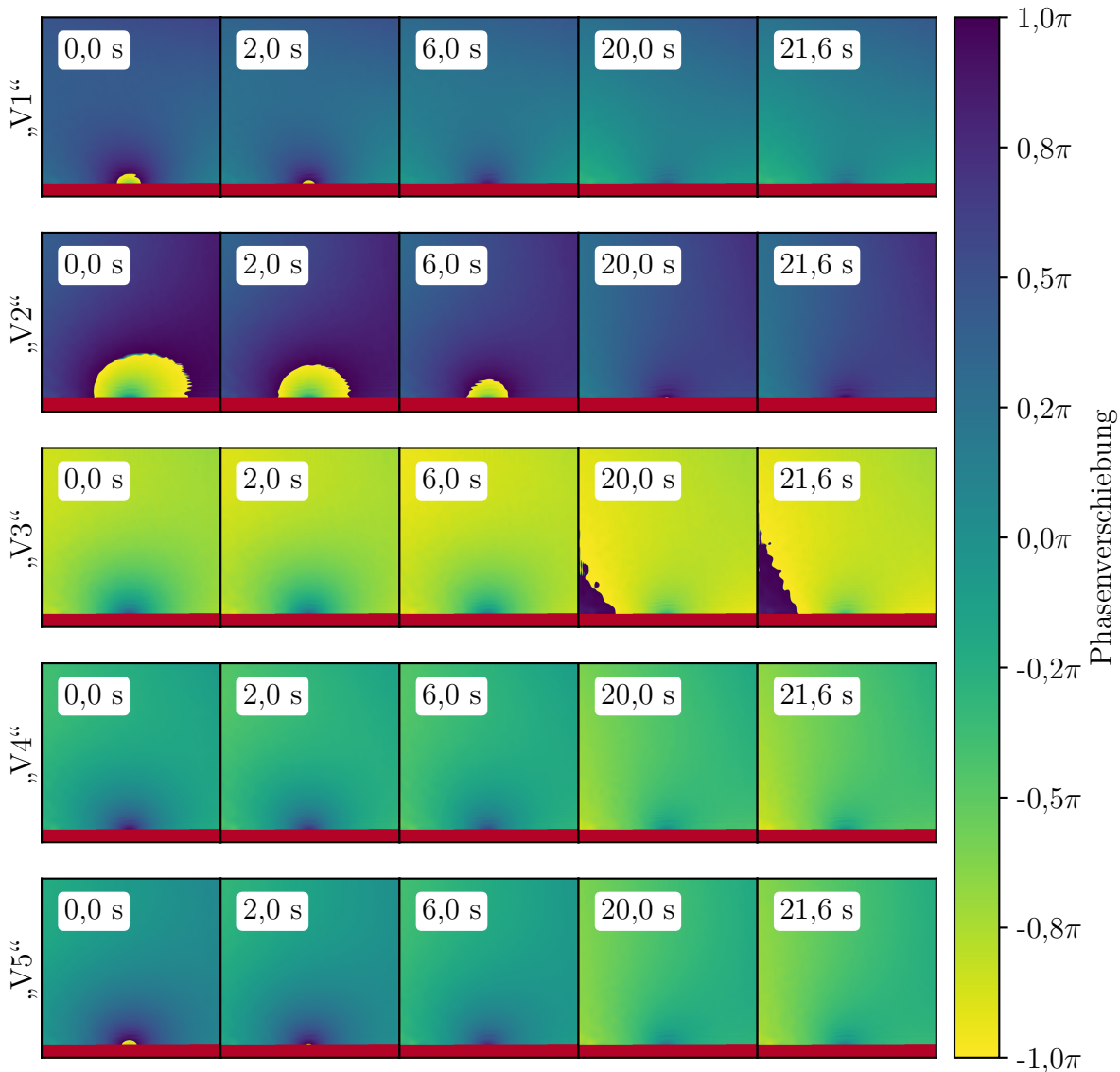


Abbildung 5.12: Dargestellt wird der zeitliche Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen einer 1,1 mm breiten und 70 mm langen Linie. Die fünf Reihen entsprechen den Phasenverschiebungsverteilungen der fünf Einzelmessungen („V1“ - „V5“). Es werden jeweils die Phasenverschiebungsverteilungen für die Aufnahmezeitpunkte 0,0 s, 2,0 s, 6,0 s, 20,0 s und 21,6 s dargestellt.

Die Abbildung 5.12 zeigt den zeitlichen Verlauf der Phasenverschiebungsverteilungen einer 1,1 mm breiten und 70 mm langen Linien für alle fünf Einzelmessungen. Die ersten drei Bilder einer Reihe zeigen den Beginn und die letzten beiden Bilder einer Reihe das Ende der jeweiligen Einzelmessung. Da maximal ein Phasensprung sichtbar wird, werden die aus den Phasenverschiebungsverteilungen abgeleiteten, absoluten Gangunterschiede unter  $2\lambda$  liegen. Die Gangunterschiede der kürzeren Linien sind noch kleiner, sodass bereits kleine Störungen zu großen relativen Abweichungen führen. Im Allgemeinen wird erwartet, dass die Lösungsmittelkonzentration an den Seitenrändern und insbesondere am oberen Rand des Messbereichs abfällt, sodass sich die Phasenverschiebungsverteilung an den Rändern null annähern sollte. Im vorliegenden Fall nähern sich jedoch die Phasenverschiebungsverteilungen an den Rändern für die jeweiligen Einzelmessungen unterschiedlichen Werten

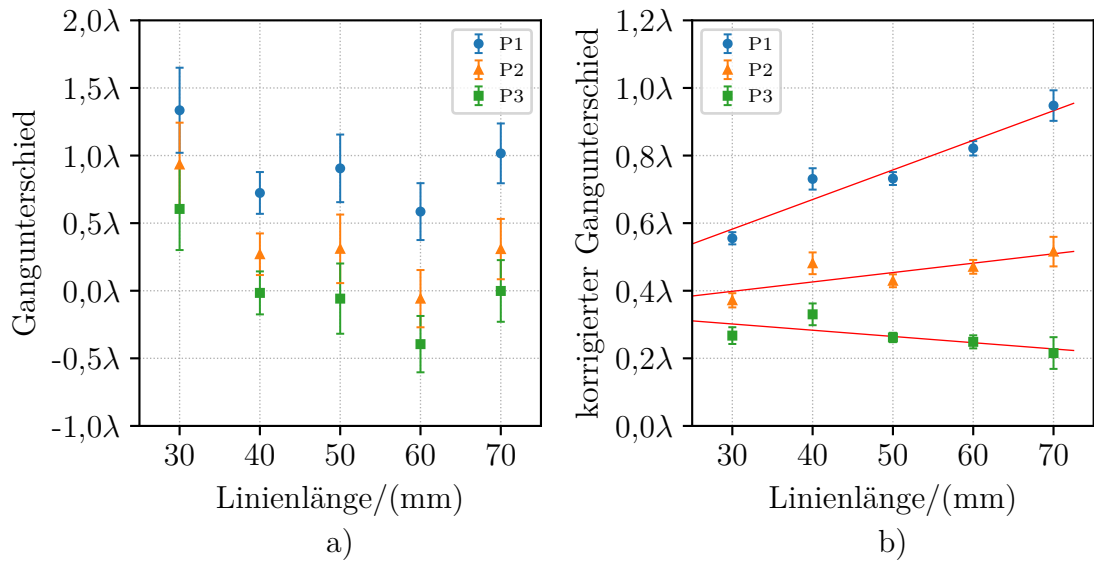


Abbildung 5.13: Auf der linken Seite werden die Gangunterschiede von drei exemplarischen Pixeln (P1, P2 und P3) zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  s gegen die Linienlänge aufgetragen (a). Die exemplarischen Pixel befinden sich zentral über der 1,1 mm breiten Linie in einer Höhe von etwa 0,1 mm, 2,3 mm beziehungsweise 7,8 mm (vgl. Abbildung 5.8). Die rechte Seite der Abbildung zeigt die korrigierten Gangunterschiede an gleicher Stelle und zum gleichen Aufnahmezeitpunkt (b). Die jeweiligen Werte wurden korrigiert, indem die entsprechenden Gangunterschiede zum Zeitpunkt  $t = 21,6$  s abgezogen wurden. Die roten Linien stellen lineare Regressionen dar, mit deren Steigung die Ethanolkonzentration über der gedruckten Linie abgeschätzt wurde.

an. Für die Einzelmessung „V1“ nähern sich die Phasenverschiebungsverteilungen an den Rändern beispielsweise  $0,4\pi$  an, während sich die Phasenverschiebungsverteilungen der Einzelmessung „V3“ eher dem Wert  $-0,8\pi$  annähern. Die variierenden Werte weisen darauf hin, dass das Interferometer aufgrund der Roboterbewegungen zwischen den Aufnahmen leicht verstellt wird. Da die absoluten Gangunterschiede insgesamt klein sind, fallen diese statistischen Schwankungen im Vergleich zu den Auswertungen der breiteren Linien stärker ins Gewicht.

Während die Veränderungen der Phasenverschiebungsverteilungen innerhalb der ersten 6 s deutlich sichtbar werden, ändert sich die Phasenverschiebungsverteilung zwischen dem Aufnahmezeitpunkt  $t = 20,0$  s und  $t = 21,6$  s kaum. Näherungsweise kann daher davon ausgegangen werden, dass zu diesem Zeitpunkt das Ethanol in der Linie bereits vollständig verdunstet ist und die Ethanolkonzentration in der Luft über der gedruckten Linie nahezu null beträgt. Diese Näherung wird im Folgenden ausgenutzt, um die Ethanolkonzentration über der gedruckten Linie zum Zeitpunkt  $t = 0$  s abzuschätzen. Von jeder Einzelmessung werden die Gangunterschiede zum Zeitpunkt  $t = 21,6$  s subtrahiert, sodass die statistischen Schwankungen aufgrund der Veränderungen im Interferometer zwischen den Einzelmessungen zu einem Großteil eliminiert werden.

Die Abbildung 5.13 zeigt die Gangunterschiede von drei exemplarischen Pixeln zum Aufnahmezeitpunkt  $t = 0$  s aufgetragen gegen die Linienlänge. Die linke Seite stellt die



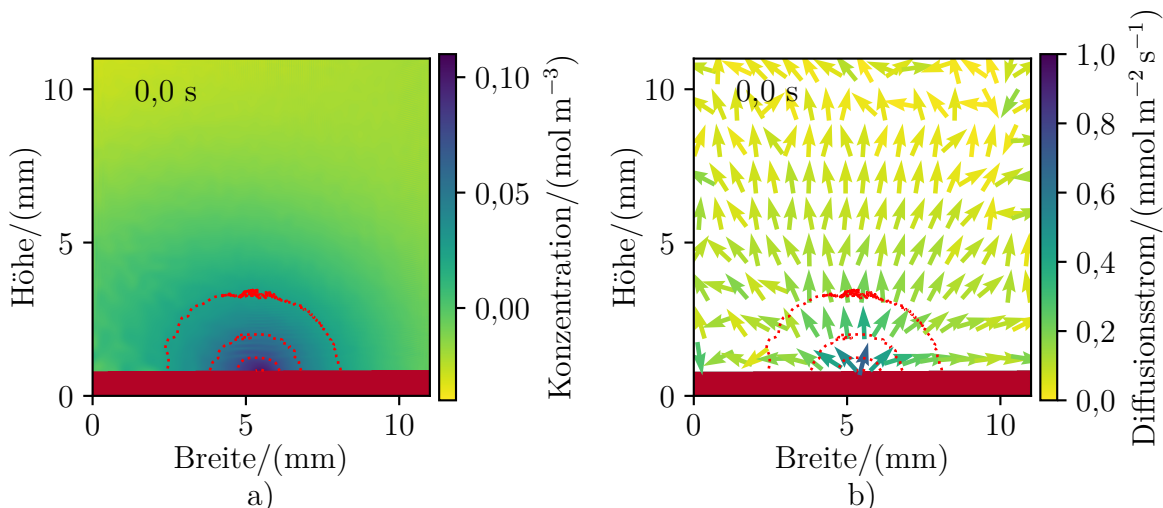


Abbildung 5.14: Die linke Seite der Abbildung zeigt die Ergebnisse der Versuchsserie „B\_0“ für eine 1,1 mm breite Linie (a). Die rechte Seite stellt den daraus berechneten Diffusionsstrom dar (b). Die gedruckte Linie befindet sich etwa mittig auf dem rot maskierten Substrat. Die gestrichelten, roten Linien stellen Linien konstanter Konzentration dar und wurden für die Werte  $25 \text{ mmol m}^{-3}$ ,  $50 \text{ mmol m}^{-3}$ ,  $75 \text{ mmol m}^{-3}$  und  $100 \text{ mmol m}^{-3}$  eingezeichnet.

Gangunterschiede vor der Subtraktion und die rechte Seite die korrigierten Gangunterschiede nach der Subtraktion der Gangunterschiede zum Zeitpunkt  $t = 21,6 \text{ s}$  dar. Es zeigt sich, dass die unkorrigierten Gangunterschiede stark streuen, sodass eine lineare Regression keine physikalisch plausiblen Ergebnisse ergeben würde. Die korrigierten Werte der rechten Seite streuen weitaus weniger, sodass lineare Regressionen gerechtfertigt sind. Die Werte weisen eine hohe Linearität auf, wobei die Gangunterschiede bei einer Linienlänge von 40 mm etwas nach oben abweichen. Die korrigierten Gangunterschiede sind alle kleiner als  $1\lambda$  und liegen damit etwa eine Größenordnung unter den festgestellten Gangunterschieden bei den Linienbreiten von 2,4 mm, 5,1 mm und 11 mm (vgl. Abbildung 5.8).

Aus den Steigungen der linearen Regressionen wird analog zu den vorherigen Auswertungen die Stoffmengenkonzentration des Ethanol dampfs entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich der gedruckten Linie bestimmt und in Abbildung 5.14 dargestellt. Außerdem zeigt die Abbildung den aus der Verteilung der Stoffmengenkonzentration berechneten Diffusionsstrom zum Zeitpunkt  $t = 0$ . Die maximal ermittelte Stoffmengenkonzentration liegt bei etwa  $100 \text{ mmol m}^{-3}$  und wird unmittelbar über dem Fluidfilm erreicht. Die durchschnittliche Temperatur der Umgebungsluft lag während den durchgeführten Messungen bei ungefähr  $23,5^\circ \text{C}$ , sodass die erwartete maximale Stoffmengenkonzentration über dem Ethylenglykol-Ethanol-Gemisch für den initialen Ethanol-Massenanteil von 30 wt% bei etwa  $1,1 \text{ mol m}^{-3}$  liegt. Eine zwischenzeitliche Abnahme des Ethanol-Massenanteils auf 3 wt% könnte die Abweichung der ermittelten Stoffmengenkonzentration von der erwarteten Stoffmengenkonzentration vollständig erklären. Offenbar verdunstet bereits während des Druckvorgangs und während der Positionierung des Substrats in die Messposition ein Großteil des Ethanols. Aufgrund der geringen Linienbreite ist insgesamt weniger Ethanol im Fluidfilm vorhanden, sodass sich eine verstärkte Verdunstung an den Fluidrändern und eine verstärkte Verdunstung aufgrund erzwungener Konvektion stärker auf den



Ethanol-Massenanteil im Fluidfilm auswirken.

Der dargestellte Diffusionsstrom in Abbildung 5.14 b) wurde analog zu Abbildung 5.3 berechnet, indem zunächst die Auflösung der Stoffmengenkonzentrationsverteilung auf etwa  $5 \text{ px mm}^{-1}$  reduziert wurde. Anschließend wurde der räumliche Gradient bestimmt und mit dem Diffusionskoeffizienten von Ethanol in Luft multipliziert. Der maximale Diffusionsstrom liegt bei etwa  $0,94 \text{ mmol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , wobei der Diffusionsstrom erwartungsgemäß senkrecht zu den rot gestrichelten Linien konstanter Konzentration verläuft. Die Grashof-Zahl der vorliegenden Messgeometrie liegt für eine maximale Stoffmengenkonzentration des Ethanols von  $100 \text{ mmol m}^{-3}$  bei etwa 0,01, sodass die erwarteten Auftriebskräfte deutlich kleiner sind als die viskosen Kräfte. Die Verdampfung des Ethanols sowie die Verteilung des Ethanoldampfs über der gedruckten Linie beruhen demnach im Wesentlichen auf einem diffusiven Stofftransport. Die Linien konstanter Konzentration sind daher kaum gestaucht und verlaufen nahezu rotationssymmetrisch um den Mittelpunkt des Fluidfilms.

Es lässt sich zusammenfassend festhalten, dass die leichte Modifikation des Auswertungsverfahrens die Bestimmung geringer Ethanolkonzentrationen verbessert. Es wird an dieser Stelle jedoch erneut darauf hingewiesen, dass das gezeigte Vorgehen die restliche Ethanolkonzentration zum Zeitpunkt  $t = 21,6 \text{ s}$  vernachlässigt und die abgeleitete Ethanolkonzentration zum Zeitpunkt  $t = 0 \text{ s}$  auf dieser Näherung beruht. Indem die Dauer einer Einzelmessung verlängert wird beziehungsweise die letzte Bildaufnahme zu einem späteren Zeitpunkt aufgenommen wird, kann der resultierende Fehler verringert und die Bestimmung der Konzentrationsverteilung verbessert werden. Insbesondere bei reinen Fluiden, die vollständig innerhalb einer endlichen Zeit verdunsten, kann das modifizierte Auswertungsverfahren die Ermittlung der Konzentrationsverteilungen verbessern.

Die wissenschaftliche Zielsetzung der Arbeit bestand darin, den Lösungsmitteldampf in der Umgebung eines bedruckten Substrats zu visualisieren. Außerdem sollte die Konzentration des Lösungsmitteldampfs quantitativ bestimmt werden. Diese Zielsetzung wurde durch den vorliegenden Messaufbau und die beschriebene Auswertungsmethode für linienförmige Fluidfilme erreicht. Nachfolgend werden die Ergebnisse zusammengefasst und potenzielle Verbesserungen genannt.



## 6 Zusammenfassung und Ausblick

In der gedruckten Elektronik und vielen weiteren technischen Anwendungen ist ein tiefes Verständnis von Verdunstungsprozessen essenziell für deren Optimierung. Dabei handelt es sich häufig um die Verdunstung von dünnen, zusammenhängenden Fluidfilmen. Um die Verteilung des Lösungsmitteldampfs in der Umgebung von gedruckten Fluidfilmen zu visualisieren und die Lösungsmittelkonzentration quantitativ zu bestimmen, wurde in der vorliegenden Arbeit eine Inkjet-Druckeinheit und ein Laser-Michelson-Interferometer in die Roboterzelle eines Sechs-Achs-Roboters integriert. Weiterhin wurde eine automatisierte Auswertungsroutine zur Analyse der Interferogramme und zur Berechnung der Lösungsmittelkonzentration entwickelt.

Durch die Verwendung des Inkjet-Druckverfahrens konnten variable Druckmuster, das heißt dünne Fluidfilme variabler Geometrie, auf dem Substrat erzeugt werden. Der Roboter wurde verwendet, um das Substrat mit hoher Wiederholgenauigkeit während des Druckvorgangs entlang des Druckkopfs der Inkjet-Druckeinheit zu führen und das bedruckte Substrat anschließend in die Messposition im Interferometer zu bringen. Indem der Roboter bei jedem Messvorgang sowohl den Druckprozess als auch den Aufnahmeprozess der Kamera initiierte, konnte die Vergleichbarkeit zwischen konsekutiven Messvorgängen gewährleistet werden. Durch die automatisierte Bewegung des Substrats in der Roboterzelle wird die Verteilung des Lösungsmitteldampfs über dem verdunstenden Fluidfilm nicht unmittelbar nach dem Druckvorgang, jedoch immer zum gleichen Zeitpunkt nach dem Druckvorgang gemessen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden insgesamt vier Versuchsreihen durchgeführt, wobei insgesamt 250 linienförmige Fluidfilme gedruckt wurden. Um die Verdruckbarkeit des Druckfluids zu gewährleisten, wurde bei allen Untersuchungen ein binäres Druckfluid aus Ethylenglykol und Ethanol eingesetzt. Da der Sättigungsdampfdruck des Ethylenglykols bei Raumtemperatur weit unter dem Sättigungsdampfdruck von Ethanol liegt, kann die Verdunstung von Ethylenglykol aus dem binären Gemisch gegenüber der Verdunstung von Ethanol vernachlässigt werden. Aufgrund der erhöhten Molrefraktion von Ethanol ändert das verdunstende Ethanol den Brechungsindex des den Fluidfilm umgebenden Gases. Positioniert man den verdunstenden Fluidfilm so im Messarm des Interferometers, dass die Laserstrahlung parallel zur Substratoberfläche verläuft, so führt die Änderung des Brechungsindex des Gases zu einer Phasendifferenz zwischen der elektromagnetischen Welle des Messarms und der elektromagnetischen Welle des Referenzarms. Überlagert man anschließend die beiden Wellen, so interferieren diese und es entstehen Interferogramme, die mithilfe eines CMOS-Sensors digitalisiert werden. Mithilfe der *Windowed-Fourier-Transform*-Methode lässt sich durch einen Vergleich der Messaufnahme mit Referenzaufnahmen die durch den Lösungsmitteldampf hervorgerufene Phasenverschiebung berechnen. Aufgrund der Wellennatur der Laserstrahlung treten in der zweidimensionalen Phasenver-

schiebungsverteilung Phasensprünge auf, die anschließend mit dem Linien-Algorithmus entfernt werden. Der so erhaltene Gangunterschied entspricht der Integration der Brechungsindexdifferenz zwischen dem Gasgemisch und reiner Luft entlang des Pfads der elektromagnetischen Welle durch das Gasgemisch. Da die Änderung des Brechungsindex durch den Lösungsmitteldampf hervorgerufen wird, entspricht die zweidimensionale Verteilung des Gangunterschieds einer Projektion der dreidimensionalen Verteilung des Lösungsmitteldampfs auf die Ebene des CMOS-Sensors. Erst durch die sukzessive Messung von mehreren linienförmigen Fluidfilmen unterschiedlicher Länge aber gleicher Breite lässt sich daher eine quantitative Konzentrationsverteilung des Lösungsmitteldampfs entlang eines Querschnitts durch den mittleren Bereich des linienförmigen Fluidfilms bestimmen. Dieser Konzentrationsquerschnitt stellt das Endergebnis des vorliegenden Messaufbaus dar und wurde für die einzelnen Versuchsreihen für unterschiedliche Aufnahmezeitpunkte berechnet, um den zeitlichen Verlauf der Lösungsmitteldampfverteilung sowie lokale Verdunstungsraten entlang der Fluidfilmoberfläche zu bestimmen.

In den ersten drei Versuchsreihen wurde der Einfluss der Substratneigung auf die Lösungsmitteldampfverteilung über verdunstenden Fluidfilmen untersucht. Dabei wurde die Breite des linienförmigen Fluidfilms konstant gehalten und das Substrat in einem Neigungswinkel von  $0^\circ$ ,  $90^\circ$  und  $180^\circ$  in dem Messarm platziert. Die höchsten Werte für die Stoffmengenkonzentration wurden erwartungsgemäß an der Phasengrenzfläche zwischen flüssiger und gasförmiger Phase erreicht und entsprechen in ihrer Größenordnung den theoretisch erwarteten Werten. Da der Massenanteil von Ethanol in dem binären Gemisch im Laufe des Verdunstungsprozesses sinkt, verringert sich gemäß dem Raoult'schen Gesetz auch der Sättigungsdampfdruck des Ethanols beziehungsweise dessen maximale Stoffmengenkonzentration im Gas an der Phasengrenzfläche. Dies erhöht die Dynamik der Lösungsmitteldampfverteilung über dem verdunstenden Fluidfilm und erschwert den quantitativen Vergleich der gemessenen Werte mit den theoretisch erwarteten Werten. Mögliche Schwankungen der Substrattemperatur verringern zudem die Reproduzierbarkeit der Einzelmessungen, sodass insbesondere für kleine Stoffmengenkonzentrationen an den Rändern des Messbereichs teilweise physikalisch unplausible negative Stoffmengenkonzentrationen bestimmt werden.

Die bestimmten Lösungsmitteldampfverteilungen wurden außerdem genutzt, um die lokale Verdunstungsrate entlang der Phasengrenzfläche abzuschätzen. Hierfür wurde der Diffusionsstrom in der Nähe der Phasengrenzfläche mithilfe des räumlichen Gradienten der Stoffmengenkonzentration berechnet. Da der konvektive Stofftransport in der Nähe der Grenzfläche auf null abfällt, stellt der Diffusionsstrom ein Maß für die lokale Verdunstungsrate des Fluidfilms dar. Es wird deutlich, dass die Fluidfilme auf einem horizontalen Substrat am Rand stärker verdunsten als in der Mitte des Films. Die Randüberhöhung der Verdunstungsrate ist dabei symmetrisch. Bei den Fluidfilmen auf einem senkrechten Substrat weist der obere Rand des Fluidfilms eine weitaus höhere Verdunstung auf als der untere Rand des Fluidfilms. Dies liegt daran, dass das mit Ethanol gesättigte Gas dichter ist als die Dichte der umgebenden Luft und daher abfällt. Von oben strömt ungesättigte Luft nach und erhöht somit die Verdunstungsrate am oberen Rand des Fluidfilms. Die Betrachtungen der lokalen Verdunstungsrate sind essenziell für die Trocknung gedruckter Schichten in der gedruckten Elektronik, da Unterschiede in der Verdunstungsrate im Allgemeinen zu Strömungen innerhalb der gedruckten Schicht und damit potenziell zu Störungen der Schicht führen können.

Bei der vierten Versuchsreihe der vorliegenden Arbeit wurde die Breite des Fluidfilms variiert, wobei das Substrat stets horizontal nach oben gerichtet in dem Messarm des Interferometers platziert wurde. Es zeigt sich, dass die maximalen Stoffmengenkonzentration mit zunehmender Breite der Fluidfilme ansteigen. Dies bedeutet, dass Ethanol bei den schmaleren Fluidfilmen zum Messzeitpunkt bereits einen geringeren Massenanteil in dem Fluidfilm hatte und somit bereits verhältnismäßig mehr Ethanol während dem Druckvorgang und der Substratpositionierung verdampft ist. Für eine bessere Vergleichbarkeit innerhalb der Versuchsreihe könnte ein reines Druckfluid genutzt werden. Hierdurch bliebe der Sättigungsdampfdruck und damit die Stoffmengenkonzentration an der Phasengrenzfläche während des Verdunstungsprozesses bei gleichbleibender Temperatur konstant. Bei der Wahl des Druckfluids gilt es allerdings die Verdruckbarkeit, den Sättigungsdampfdruck sowie die Molrefraktion des chemischen Stoffs zu berücksichtigen.

Die in dieser Dissertation präsentierte digitale, holografische Interferometrie ermöglicht es erstmals die Verteilung des Lösungsmitteldampfes gedruckter Fluidfilme orts- und zeitaufgelöst darzustellen und daraus die lokalen Verdunstungsraten entlang der Phasengrenzfläche abzuleiten. Die Zielsetzung der Arbeit wurde sowohl hinsichtlich der qualitativen Untersuchung des Lösungsmitteldampfes in der Umgebung eines gedruckten Fluidfilms als auch hinsichtlich der quantitativen Bestimmung der Konzentration des Lösungsmitteldampfes erreicht. Durch die Automatisierung des Versuchsablaufs und der Datenauswertung lassen sich große Versuchsreihen realisieren, um die Grundlagenforschung zur Verdunstung dünner Fluidfilme zu ergänzen oder technische Anwendungen zu verbessern.

Die Versuchsreihen der vorliegenden Arbeit wurden ausschließlich bei Raumtemperatur durchgeführt, um thermisch induzierte natürliche Konvektion zu vermeiden. Dabei wurden die Temperatur, der Druck sowie die relative Luftfeuchtigkeit kontinuierlich aufgezeichnet. Die passive Überwachung der Umgebungsparameter könnte zukünftig durch eine Messung der Substrattemperatur und eine aktive Kontrolle der Umgebungsparameter ergänzt werden. Hierdurch ließe sich die Vielfalt der verwendbaren Fluide sowie die Reproduzierbarkeit der Einzelmessungen verbessern.



# Literaturverzeichnis

- 3M, Hrsg. (2021). *3M Novec 7000 Engineered Fluid: Technical Data*. Verfügbar unter: <https://multimedia.3m.com/mws/media/1213720/3m-novec-7000-engineered-fluid-tds.pdf> (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Akterian, S. (2020). „Evaluating the vapour evaporation from the surface of pure organic solvents and their mixtures“. In: *Food Science and Applied Biotechnology* 3.1, S. 77.
- Ambrose, D. und Sprake, C. (1970). „Thermodynamic properties of organic oxygen compounds XXV. Vapour pressures and normal boiling temperatures of aliphatic alcohols“. In: *The Journal of Chemical Thermodynamics* 2.5, S. 631–645.
- Amruth, C., Szymański, M. Z., Łuszczynska, B. und Ulański, J. (2019). „Inkjet Printing of Super Yellow: Ink Formulation, Film Optimization, OLEDs Fabrication, and Transient Electroluminescence“. In: *Scientific reports* 9.1, S. 8493.
- ams AG, Hrsg. (2021). *CMV4000 Datasheet: Global Shutter CMOS Image Sensor for Machine Vision*. Verfügbar unter: [https://ams.com/documents/20143/4421878/CMV4000\\_DS000728\\_6-00.pdf](https://ams.com/documents/20143/4421878/CMV4000_DS000728_6-00.pdf) (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Aspnes, D. E. (1982). „Optical properties of thin films“. In: *Thin solid films* 89.3, S. 249–262.
- Atkins, P. W. und Paula, J. de (2006). *Atkins' Physical chemistry*. 8th ed. New York: W.H. Freeman and Company.
- Basler AG, Hrsg. (2020). *EMVA Data Overview: Monochrome Area Scan Cameras*. Verfügbar unter: [https://www.rauscher.de/fileadmin/user\\_upload/Basler/Ace%20allg/BAS2012\\_EMVA\\_Data\\_Overview\\_A4\\_EN\\_SAP0136\\_No\\_9\\_web.pdf](https://www.rauscher.de/fileadmin/user_upload/Basler/Ace%20allg/BAS2012_EMVA_Data_Overview_A4_EN_SAP0136_No_9_web.pdf) (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Battiato, S., Castorina, A. und Mancuso, M. (2002). „High-dynamic-range imaging for digital still camera“. In: *Sensors and Camera Systems for Scientific, Industrial, and Digital Photography Applications III*. Hrsg. von M. M. Blouke, J. Canosa und N. Sampat. SPIE Proceedings. SPIE, S. 324–335.
- Bejan, A. (2013). *Convection heat transfer*. New York, NY: John Wiley & Sons.

- Benabdelhalim, H. und Brutin, D. (2022). „Spreading, Wetting and Drying of Human Blood“. In: *The Surface Wettability Effect on Phase Change*. Hrsg. von M. Marengo und J. de Coninck. Cham: Springer International Publishing, S. 105–132.
- Bergman, T. L., Incropera, F. P., DeWitt, D. P. und Lavine, A. S. (2011). *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. 7. Aufl. New York: John Wiley & Sons.
- Bhatia, A., Roth, N. und Weigand, B. (2019). „Mach-Zehnder interferometry investigations in drying of water-saturated porous materials“. In: *Journal of Applied Physics* 125.18, S. 184901.
- Born, M. (1972). *Optik*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Bracewell, R. N. (1989). „The Fourier Transform“. In: *Scientific American* 260.6, S. 86–95.
- Braig, F. (2023). *Vapour Imaging: Python code to evaluate interferograms of evaporating liquid films and sample data*. Verfügbar unter: <https://doi.org/10.48328/tudatalib-1193.4> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Braig, F., Narrog, F., Sauer, H. M. und Dörsam, E. (2021). „Interferometric Imaging of Solvent Vapor of Evaporating Liquid Films“. In: *Langmuir : the ACS journal of surfaces and colloids* 37.17, S. 5385–5392.
- Brumm, P., Ciotta, N., Sauer, H. M., Blaeser, A. und Dörsam, E. (2023). „Deep learning study of induced stochastic pattern formation in the gravure printing fluid splitting process“. In: *Journal of coatings technology and research* 20.1, S. 51–72.
- Burger, W. und Burge, M. J. (2015). *Digitale Bildverarbeitung*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Burt, C. M., Mutziger, A. J., Allen, R. G. und Howell, T. A. (2005). „Evaporation Research: Review and Interpretation“. In: *Journal of Irrigation and Drainage Engineering* 131.1, S. 37–58.
- Cabrera, H., Akbar, J., Korte, D., Ashraf, I., Ramírez-Miquet, E. E., Marín, E. und Niemela, J. (2018). „Absorption Spectra of Ethanol and Water Using a Photothermal Lens Spectrophotometer“. In: *Applied spectroscopy* 72.7, S. 1069–1073.
- Castrejon-Pita, J. R., Baxter, W. R. S., Morgan, J., Temple, S., Martin, G. D. und Hutchings, I. M. (2013). „Future, Opportunities and Challenges of Inkjet Technologies“. In: *Atomization and Sprays* 23.6, S. 541–565.
- Çengel, Y. A. und Cimbala, J. M. (2018). *Fluid mechanics: Fundamentals and applications*. Fourth edition. New York, N.Y.: McGraw-Hill.
- Ciddor, P. E. (1996). „Refractive index of air: new equations for the visible and near infrared“. In: *Applied optics* 35.9, S. 1566–1573.



- Cinquino, M., Prontera, C. T., Zizzari, A., Giuri, A., Pugliese, M., Giannuzzi, R., Monteduro, A. G., Carugati, M., Banfi, A., Carallo, S., Rizzo, A., Andretta, A., Dugnani, G., Gigli, G. und Maiorano, V. (2022). „Effect of surface tension and drying time on inkjet-printed PEDOT:PSS for ITO-free OLED devices“. In: *Journal of Science: Advanced Materials and Devices* 7.1, S. 100394.
- Commission Internationale de l’Eclairage, Hrsg. (2020). *CIE S 017:2020 ILV: International Lighting Vocabulary*. Verfügbar unter: <https://cie.co.at/e-ilv> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Daume, D. (2020). „Entwicklung und Evaluierung großflächiger Dünnschichtmesstechnik am Beispiel gedruckter organischer Leuchtdioden“. Diss. Technische Universität Darmstadt. Verfügbar unter: <https://doi.org/10.25534/tuprints-00012879> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Deegan, R. D., Bakajin, O., Dupont, T. F., Huber, G., Nagel, S. R. und Witten, T. A. (1997). „Capillary flow as the cause of ring stains from dried liquid drops“. In: *Nature* 389.6653, S. 827–829.
- Dehaeck, S. und Colinet, P. (2016). „Improving speed and precision of local frequency analysis using Gaussian ridge interpolation for wavelet and windowed Fourier ridge algorithms“. In: *Optics and Lasers in Engineering* 77, S. 54–63.
- Dehaeck, S., Tsoumpas, Y. und Colinet, P. (2013). „Analyzing Droplets through Digital Holography and a 1D Wavelet Transform Technique“. In: *Digital Holography and Three-Dimensional Imaging*. Optica Publishing Group, DW3A.5.
- Dehaeck, S., Tsoumpas, Y. und Colinet, P. (2015). „Analyzing closed-fringe images using two-dimensional Fan wavelets“. In: *Applied optics* 54.10, S. 2939–2952.
- Dehaeck, S. und Colinet, P. (2010). *Vapour Cloud Dynamics Induced by Evaporation*. Verfügbar unter: <http://arxiv.org/pdf/1010.3258v1> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Dehaeck, S. und Colinet, P. (2012). „Measuring Vapour Cloud Concentrations with Digital Holography“. In: *Digital Holography and Three-Dimensional Imaging*, DTu2C.2.
- Dehaeck, S., Rednikov, A. und Colinet, P. (2014). „Vapor-based interferometric measurement of local evaporation rate and interfacial temperature of evaporating droplets“. In: *Langmuir : the ACS journal of surfaces and colloids* 30.8, S. 2002–2008.
- Dehaeck, S., Wylock, C. und Colinet, P. (2008). „A Mach-Zehnder interferometer-based study of evaporation of binary mixtures in Hele-Shaw cells“. In: *Proceeding of the 13th International Symposium on Flow Visualisation ISFV*.
- Demtröder, W. (2012). *Experimentalphysik 1: Mechanik und Wärme*. 6. Aufl. 2013. Springer-Lehrbuch. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.

- Demtröder, W. (2013). *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Dholey, S. (2016). „Free convection boundary layer flow of a viscous fluid above a hot horizontal semi-infinite flat plate with prescribed surface temperature“. In: *Alexandria Engineering Journal* 55.3, S. 2449–2461.
- DIN EN ISO 11146-1 (2021). *Laser und Laseranlagen - Prüfverfahren für Laserstrahlmessungen, Divergenzwinkel und Beugungsmaßzahlen - Teil 1: Stigmatische und einfach astigmatische Strahlen (ISO 11146-1:2021); Deutsche Fassung EN ISO 11146-1:2021*. Berlin: Beuth Verlag GmbH.
- Dollet, B. und Boulogne, F. (2017). „Natural convection above circular disks of evaporating liquids“. In: *Physical Review Fluids* 2.5, S. 053501.
- Dubois, P. F. (2007). „Python: Batteries Included“. In: *Computing in Science & Engineering* 9.3, S. 7–9.
- Eres, M. H., Weidner, D. E. und Schwartz, L. W. (1999). „Three-Dimensional Direct Numerical Simulation of Surface-Tension-Gradient Effects on the Leveling of an Evaporating Multicomponent Fluid“. In: *Langmuir : the ACS journal of surfaces and colloids* 15.5, S. 1859–1871.
- EURECA Messtechnik GmbH, Hrsg. (2019). *Glass Cover Removal: Line Scan and Area Sensors*. Verfügbar unter: [https://www.eureca.de/files/glasscoverremoval\\_2019-09-24.pdf](https://www.eureca.de/files/glasscoverremoval_2019-09-24.pdf) (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- European Machine Vision Association, Hrsg. (2021). *EMVA Standard 1288: Standard for Characterization of Image Sensors and Cameras*. Verfügbar unter: [https://www.emva.org/wp-content/uploads/EMVA1288Linear\\_4.0Release.pdf](https://www.emva.org/wp-content/uploads/EMVA1288Linear_4.0Release.pdf) (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Feynman, R. P., Leighton, R. B. und Sands, M. L. (2010). *The Feynman Lectures on Physics: Mainly mechanics, radiation, and heat*. New millenium edition. Bd. Volume 1. The Feynman lectures on physics / Feynman, Leighton, Sands. New York: Basic Books.
- Finot, C. und Boscolo, S. (2022). „Exploring Fresnel diffraction at a straight edge with a neural network“. In: *European Journal of Physics* 43.3, S. 035306.
- Fließbach, T. (2010). *Statistische Physik: Lehrbuch zur Theoretischen Physik IV*. 5. Aufl. Bd. 4. Lehrbuch zur theoretischen Physik. Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag.
- Fukuda, K. und Someya, T. (2017). „Recent Progress in the Development of Printed Thin-Film Transistors and Circuits with High-Resolution Printing Technology“. In: *Advanced materials (Deerfield Beach, Fla.)* 29.25, S. 1602736.

- Gaitonde, U. N., Deshpande, D. D. und Sukhatme, S. P. (1978). „The thermal conductivity of liquid mixtures“. In: *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 17.4, S. 321–325.
- Gambaryan-Roisman, T. (2015). „Solid Substrate Properties“. In: *Droplet Wetting and Evaporation*. Elsevier, S. 139–156.
- Gardiner, W. C., Hidaka, Y. und Tanzawa, T. (1981). „Refractivity of combustion gases“. In: *Combustion and flame* 40, S. 213–219.
- Garivalis, A. I., Di Marco, P., Dehaeck, S., Rednikov, A. und Colinet, P. (2022). „Experimental study on evaporation of droplets in microgravity and in the presence of electric field“. In: *Journal of Physics: Conference Series* 2177.1, S. 012047.
- Gebhart, B. (1988). *Buoyancy induced flows and transport: Reference edition*. Washington: Hemisphere Publ. Corp.
- Geffroy, B., Le Roy, P. und Prat, C. (2006). „Organic light-emitting diode (OLED) technology: materials, devices and display technologies“. In: *Polymer International* 55.6, S. 572–582.
- Gentec Electro-Optics, Inc., Hrsg. (2020). *User Manual: Accessories for Beam Diagnostics and Attenuators*. Verfügbar unter: <https://downloads.gentec-eo.com/prod/ce7eaa0/103866-Manual-Beamage-3-0-Accessories-V7.pdf> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Gentec Electro-Optics, Inc., Hrsg. (2021). *User Manual: Beamage Series, USB 3.0 Beam Profiling Cameras*. Verfügbar unter: <https://downloads.gentec-eo.com/prod/9c681542/103680-Manual-Beamage-Rev-26.pdf> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Ghiglia, D. C. und Pritt, M. D. (1998). *Two-dimensional phase unwrapping: Theory, algorithms, and software*. Wiley-Interscience. New York und Chichester: Wiley.
- Gill, W. N., Zeh, D. W. und Casal, E. (1965). „Free convection on a horizontal plate“. In: *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik ZAMP* 16.4, S. 539–541.
- Gladwell, I., Hrsg. (1980). *Computational techniques for ordinary differential equations: Institute of Mathematics and Its Applications; Conference series / The Institute of Mathematics and its Applications*. London: Academic Press.
- Goldhahn, E. (2009). „Weiterentwicklung der Hintergrundschlierenmethode zu einem quantitativen Verfahren der Vermessung von Dichtefeldern“. Diss. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover.
- Gonzalez, C. und van Ness, H. C. (1983). „Excess thermodynamic functions for ternary systems. 9. Total-pressure data and GE for water/ethylene glycol/ethanol at 50. degree. C“. In: *Journal Of Chemical And Engineering Data* 28.4, S. 410–412.

- Gonzalez-Macia, L., Morrin, A., Smyth, M. R. und Killard, A. J. (2010). „Advanced printing and deposition methodologies for the fabrication of biosensors and biodevices“. In: *The Analyst* 135.5, S. 845–867.
- Hain, R., Kähler, C. J. und Tropea, C. (2007). „Comparison of CCD, CMOS and intensified cameras“. In: *Experiments in Fluids* 42.3, S. 403–411.
- Harris, C. R., Millman, K. J., van der Walt, S. J., Gommers, R., Virtanen, P., Cournapeau, D., Wieser, E., Taylor, J., Berg, S., Smith, N. J., Kern, R., Picus, M., Hoyer, S., van Kerkwijk, M. H., Brett, M., Haldane, A., Del Río, J. F., Wiebe, M., Peterson, P., Gérard-Marchant, P., Sheppard, K., Reddy, T., Weckesser, W., Abbasi, H., Gohlke, C. und Oliphant, T. E. (2020). „Array programming with NumPy“. In: *Nature* 585.7825, S. 357–362.
- Hauf, W. und Grigull, U. (1970). „Optical Methods in Heat Transfer“. In: Bd. 6. *Advances in Heat Transfer*. Elsevier, S. 133–366.
- Henke, S., Kadlec, P. und Bubník, Z. (2010). „Physico-chemical properties of ethanol – Compilation of existing data“. In: *Journal of Food Engineering* 99.4, S. 497–504.
- Hernandez-Sosa, G., Bornemann, N., Ringle, I., Agari, M., Dörsam, E., Mechau, N. und Lemmer, U. (2013). „Rheological and Drying Considerations for Uniformly Gravure-Printed Layers: Towards Large-Area Flexible Organic Light-Emitting Diodes“. In: *Advanced Functional Materials* 23.25, S. 3164–3171.
- Herráez, M. A., Burton, D. R., Lalor, M. J. und Gdeisat, M. A. (2002). „Fast two-dimensional phase-unwrapping algorithm based on sorting by reliability following a noncontinuous path“. In: *Applied optics* 41.35, S. 7437–7444.
- Heshmat, S., Tomioka, S. und Nishiyama, S. (2014). „Performance Evaluation of Phase Unwrapping Algorithms for Noisy Phase Measurements“. In: *International journal of optomechatronics* 8.4, S. 260–274.
- Hoshino, K., Nielsen, F. und Nishimura, T. (2007). „Noise reduction in CMOS image sensors for high quality imaging: the autocorrelation function filter on burst image sequences“. In: *Graphics, Vision and Image Processing Journal*, S. 17–24.
- Howes, W. L. (1985). „Rainbow schlieren vs Mach-Zehnder interferometer: a comparison“. In: *Applied optics* 24.6, S. 816.
- Howison, S. D., Moriarty, J. A., Ockendon, J. R., Terrill, E. L. und Wilson, S. K. (1997). „A mathematical model for drying paint layers“. In: *Journal of Engineering Mathematics* 32.4, S. 377–394.
- Jähne, B. (2012). *Digitale Bildverarbeitung*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.

- Jones, W. S. und Tamplin, W. S. (1952). „Chapter 3: Physical Properties of Ethylene Glycol“. In: *Glycols*. Hrsg. von George Oliver Curme Jr. New York: Reinhold Publishing Corporation.
- Karakurt, I. und Lin, L. (2020). „3D printing technologies: techniques, materials, and post-processing“. In: *Current Opinion in Chemical Engineering* 28, S. 134–143.
- Kasim, M. F. (2017). *Fast 2D phase unwrapping implementation in MATLAB*. Verfügbar unter: [https://github.com/mfkasim91/unwrap\\_phase/](https://github.com/mfkasim91/unwrap_phase/) (Zuletzt geprüft am 04.07.2022).
- Kemao, Q. (2008). „A simple phase unwrapping approach based on filtering by windowed Fourier transform: A note on the threshold selection“. In: *Optics & Laser Technology* 40.8, S. 1091–1098.
- Kemao, Q. (2013). *Windowed fringe pattern analysis*. Bd. PM239. SPIE Press monograph. Bellingham, Washington (1000 20th St. Bellingham WA 98225-6705 USA): SPIE Press.
- Kipphan, H., Hrsg. (2000). *Handbuch der Printmedien: Technologien und Produktionsverfahren*. Springer electronic media. Berlin und Heidelberg: Springer Electronic Media.
- Kragh, H. (2018). „The Lorenz-Lorentz formula: Origin and early history“. In: *Substantia* 2.2, S. 7–18.
- Kreis, T. (2005). *Handbook of holographic interferometry: Optical and digital methods*. Weinheim: Wiley-VCH.
- KUKA Deutschland GmbH, Hrsg. (2021). *KR 3 R540*. Verfügbar unter: [https://www.kuka.com/-/media/kuka-downloads/imported/6b77eecacfe542d3b736af377562ecaa/0000270971\\_de.pdf?rev=5181e2a602f246cb9f0cfd6b2786636&hash=8D4BB0BFEA39BE8C8AFC32AE095A8097](https://www.kuka.com/-/media/kuka-downloads/imported/6b77eecacfe542d3b736af377562ecaa/0000270971_de.pdf?rev=5181e2a602f246cb9f0cfd6b2786636&hash=8D4BB0BFEA39BE8C8AFC32AE095A8097) (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Kumar, V., Kumar, M. und Shakher, C. (2014). „Measurement of natural convective heat transfer coefficient along the surface of a heated wire using digital holographic interferometry“. In: *Applied optics* 53.27, G74–83.
- Lapuerta, M., Hernández, J. P. und Agudelo, J. R. (2014). „An equation for the estimation of alcohol-air diffusion coefficients for modelling evaporation losses in fuel systems“. In: *Applied Thermal Engineering* 73.1, S. 539–548.
- Linstrom, P. J. und Mallard, W. G. (2023). *NIST Chemistry WebBook, NIST Standard Reference Database Number 69*. Hrsg. von National Institute of Standards and Technology. (Zuletzt geprüft am 30.01.2023).
- Lohse, D. (2022). „Fundamental Fluid Dynamics Challenges in Inkjet Printing“. In: *Annual Review of Fluid Mechanics* 54.1, S. 349–382.

- Lopes, M. C., Bonaccorso, E., Gambaryan-Roisman, T. und Stephan, P. (2013). „Influence of the substrate thermal properties on sessile droplet evaporation: Effect of transient heat transport“. In: *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 432, S. 64–70.
- Lotz, M. (2020). *Entwicklung einer roboterbasierten Inkjet-Plattform für das Bedrucken von gekrümmten Oberflächen*. Darmstadt.
- Mackay, D. und van Wesenbeeck, I. (2014). „Correlation of chemical evaporation rate with vapor pressure“. In: *Environmental science & technology* 48.17, S. 10259–10263.
- Marx, P. (2002). „Digitalluxmeter für universelle Anwendung in der Lichttechnik: Messung von Beleuchtungsstärken, Leuchtdichten und Reflexionsgraden von diffusen Raumbereichen“. In: *Elektro Journal*. (Zuletzt geprüft am 21.04.2022).
- Marx, P. (2004). *Bedienungsanleitung zum MINILUX*. Hrsg. von MX-Elektronik. Verfügbar unter: <http://www.mx-electronic.com/pdf-texte/link-lichtmess-systeme/bedienungsanleitungdeutsch.pdf> (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Mayinger, F., Merwes, D. und Feldmann, O. (2001). *Optical Measurements*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Mekhitarian, L., Sobac, B., Dehaeck, S., Haut, B. und Colinet, P. (2017). „Evaporation dynamics of completely wetting drops on geometrically textured surfaces“. In: *Europhysics Letters* 120.1, S. 16001.
- Merklein, L., Daume, D., Braig, F., Schliske, S., Rödlmeier, T., Mink, M., Kourkoulos, D., Ulber, B., Di Biase, M., Meerholz, K., Hernandez-Sosa, G., Lemmer, U., Sauer, H., Dörsam, E., Scharfer, P. und Schabel, W. (2019). „Comparative Study of Printed Multilayer OLED Fabrication through Slot Die Coating, Gravure and Inkjet Printing, and Their Combination“. In: *Colloids and Interfaces* 3.1, S. 32.
- Mersmann, A. (1986). *Stoffübertragung. Wärme- und Stoffübertragung*. Berlin und Heidelberg: Springer.
- Michelson, A. A. und Morley, E. W. (1887). „On the Relative Motion of the Earth and of the Luminiferous Ether“. In: *Sidereal Messenger* 6, S. 306–310.
- Millman, K. J. und Aivazis, M. (2011). „Python for Scientists and Engineers“. In: *Computing in Science & Engineering* 13.2, S. 9–12.
- Moya, A., Gabriel, G., Villa, R. und Del Javier Campo, F. (2017). „Inkjet-printed electrochemical sensors“. In: *Current Opinion in Electrochemistry* 3.1, S. 29–39.
- Nardecchia, I. (2022). „Detecting Gravitational Waves with Advanced Virgo“. In: *Galaxies* 10.1, S. 28.

- Narrog, F. (2020). *Implementation einer Interferenzbildauswertung zur Vermessung der Lösemittelatmosphäre einer gedruckten Probe*. Darmstadt.
- Ngo, T. D., Kashani, A., Imbalzano, G., Nguyen, K. T. und Hui, D. (2018). „Additive manufacturing (3D printing): A review of materials, methods, applications and challenges“. In: *Composites Part B: Engineering* 143, S. 172–196.
- Nolting, W. (2013). *Grundkurs Theoretische Physik 6: Statistische Physik*. 7. Aufl. 2014. Springer-Lehrbuch. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- O’Brien, R. N. und Saville, P. (1987). „Investigation of liquid drop evaporation by laser interferometry“. In: *Langmuir* 3.1, S. 41–45.
- Onwude, D. I., Hashim, N., Janius, R. B., Nawi, N. M. und Abdan, K. (2016). „Modeling the Thin-Layer Drying of Fruits and Vegetables: A Review“. In: *Comprehensive reviews in food science and food safety* 15.3, S. 599–618.
- Osgood, B. (2007). *The Fourier Transform and its Applications: Lecture Notes for EE 261*. Verfügbar unter: <https://see.stanford.edu/materials/lsoftae261/book-fall-07.pdf> (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Petersen, L. W., Rolston, D. E., Moldrup, P. und Yamaguchi, T. (1994). „Volatile Organic Vapor Diffusion and Adsorption in Soils“. In: *Journal of Environmental Quality* 23.4, S. 799–805.
- Pinnell, J., Klug, A. und Forbes, A. (2020). „Spatial filtering of structured light“. In: *American Journal of Physics* 88.12, S. 1123–1131.
- Plawsky, J. L., Fedorov, A. G., Garimella, S. V., Ma, H. B., Maroo, S. C., Chen, L. und Nam, Y. (2014). „Nano- and Microstructures for Thin-Film Evaporation—A Review“. In: *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering* 18.3, S. 251–269.
- Prandtl, L. und Betz, A. (2010). „Vier Abhandlungen zur Hydrodynamik und Aerodynamik: Flüssigkeit mit kleiner Reibung; Tragflügeltheorie, I. und II. Mitteilung; Schraubenpropeller mit geringstem Energieverlust“. In: *Göttinger Klassiker der Strömungsmechanik*. Hrsg. von A. Dillmann. Göttingen: Universitätsverlag Göttingen, S. 1–8.
- Press, W. H., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T. und Flannery, B. P. (2007). *Numerical recipes: The art of scientific computing*. 3rd ed. Cambridge, UK und New York: Cambridge University Press.
- Qin, H., Zhang, X., Singh, R., Zhang, Z. und Chen, Y. (2019). „In-process monitoring of electrohydrodynamic inkjet printing using machine vision“. In: *AIP Conference Proceedings*. Bd. 2102, S. 070008.
- Rodgers, R. C. und Hill, G. E. (1978). „Equations for vapour pressure versus temperature: derivation and use of the Antoine equation on a hand-held programmable calculator“. In: *British journal of anaesthesia* 50.5, S. 415–424.

- Rotem, Z. und Claassen, L. (1969). „Natural convection above unconfined horizontal surfaces“. In: *Journal of Fluid Mechanics* 39.1, S. 173–192.
- Ruzicka, M. C. (2008). „On dimensionless numbers“. In: *Chemical Engineering Research and Design* 86.8, S. 835–868.
- Sauer, H. M., Braig, F. und Dörsam, E. (2021). „Leveling and Drying Dynamics of Printed Liquid Films of Organic Semiconductor Solutions in OLED/OPV Applications“. In: *Advanced Materials Technologies* 6.2, S. 2000160.
- Schäfer, J. K. (2020). „In situ Untersuchung der hochdynamischen Grenzflächeninstabilität im Zylinderspalt“. Diss. Technische Universität Darmstadt. Verfügbar unter: <https://doi.org/10.25534/tuprints-00014204> (Zuletzt geprüft am 21.10.2023).
- Schiefer, E. C. (2004). „Imager cover-glass mounting“. US6953432B2.
- Schlichting, H., Gersten, K. und Krause, E. (2006). *Grenzschicht-Theorie: Mit 22 Tabellen*. 10., überarbeitete Auflage. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- Settles, G. S. (2001). *Schlieren and shadowgraph techniques: Visualizing phenomena in transparent media*. Engineering online library. Berlin und Heidelberg: Springer.
- Shamsi, S. K. und Stacey, F. D. (1967). „Michelson interferometer as an earth strain sensor“. In: *Earth and Planetary Science Letters* 3, S. 466–468.
- Shukla, D. und Panigarhi, P. K. (2020). „Digital holographic interferometry investigation of liquid hydrocarbon vapor cloud above a circular well“. In: *Applied optics* 59.19, S. 5851–5863.
- Smet, K. A. G. (2020). „Tutorial: The LuxPy Python Toolbox for Lighting and Color Science“. In: *LEUKOS* 16.3, S. 179–201.
- Sperling, A. und Kück, S. (2018). „Experimente für das neue Internationale Einheitensystem (SI): Ein Maß für sichtbares Licht–Entwicklung und Bedeutung im Internationalen Einheitensystem“. In: *PTB-Mitteilungen* 0215, S. 99–107.
- Spurk, J. und Aksel, N. (2010). *Strömungslehre*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Steinberg, S. H. (1996). *Five hundred years of printing*. 4., rev. ed. London: British Library.
- Stenzel, O. (2022). *Light–Matter Interaction*. Cham: Springer International Publishing.
- Stephan, P., Schaber, K., Stephan, K. und Mayinger, F. (2017). *Thermodynamik: Grundlagen und technische Anwendungen - Band 2: Mehrstoffsysteme und chemische Reaktionen*. 16. Aufl. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.



- Stewartson, K. (1958). „On the free convection from a horizontal plate“. In: *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik ZAMP* 9.3, S. 276–282.
- Stull, D. R. (1947). „Vapor Pressure of Pure Substances. Organic and Inorganic Compounds“. In: *Industrial & Engineering Chemistry* 39.4, S. 517–540.
- Tahara, T., Quan, X., Otani, R., Takaki, Y. und Matoba, O. (2018). „Digital holography and its multidimensional imaging applications: a review“. In: *Microscopy (Oxford, England)* 67.2, S. 55–67.
- Thorlabs, Inc., Hrsg. (2014). *Spec Sheet: CPS532-C2*. Verfügbar unter: <https://www.thorlabs.com/drawings/9997ddc259548c5d-307B88B8-AF9A-2231-C84DB47C7BB267A8/CPS532-C2-SpecSheet.pdf> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Thorlabs, Inc., Hrsg. (2021). *Precision Pinholes, Gold-Plated Copper Foils: P10C*. Verfügbar unter: <https://www.thorlabs.com/catalogpages/Obsolete/2021/P10C.pdf> (Zuletzt geprüft am 21. 10. 2023).
- Tian, L., Luo, X., Yin, M., Li, D., Xue, X. und Wang, H. (2017). „Enhanced CMOS image sensor by flexible 3D nanocone anti-reflection film“. In: *Science Bulletin* 62.2, S. 130–135.
- VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen (2013). *VDI-Wärmeatlas*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Virtanen, P., Gommers, R., Oliphant, T. E., Haberland, M., Reddy, T., Cournapeau, D., Burovski, E., Peterson, P., Weckesser, W., Bright, J., van der Walt, S. J., Brett, M., Wilson, J., Millman, K. J., Mayorov, N., Nelson, A. R. J., Jones, E., Kern, R., Larson, E., Carey, C. J., Polat, İ., Feng, Y., Moore, E. W., VanderPlas, J., Laxalde, D., Perktold, J., Cimrman, R., Henriksen, I., Quintero, E. A., Harris, C. R., Archibald, A. M., Ribeiro, A. H., Pedregosa, F. und van Mulbregt, P. (2020). „SciPy 1.0: fundamental algorithms for scientific computing in Python“. In: *Nature methods* 17.3, S. 261–272.
- Weller, H. G., Tabor, G., Jasak, H. und Fureby, C. (1998). „A tensorial approach to computational continuum mechanics using object-oriented techniques“. In: *Computers in Physics* 12.6, S. 620.
- Willingham, C. B., Taylor, W. J., Pignocco, J. M. und Rossini, F. D. (1945). „Vapor pressures and boiling points of some paraffin, alkylcyclopentane, alkylcyclohexane, and alkylbenzene hydrocarbons“. In: *Journal of Research of the National Bureau of Standards* 35.3, S. 219.
- Wu, W. (2017). „Inorganic nanomaterials for printed electronics: a review“. In: *Nanoscale* 9.22, S. 7342–7372.
- Wylock, C., Dehaeck, S., Cartage, T., Colinet, P. und Haut, B. (2011). „Experimental study of gas–liquid mass transfer coupled with chemical reactions by digital holographic interferometry“. In: *Chemical Engineering Science* 66.14, S. 3400–3412.

- Xaar plc, Hrsg. (2016). *Xaar 1003 UV User Manual*.
- Zapka, W., Hrsg. (2017). *Handbook of Industrial Inkjet Printing: A Full System Approach*. 1. Auflage. Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.
- Zappa, E. und Busca, G. (2008). „Comparison of eight unwrapping algorithms applied to Fourier-transform profilometry“. In: *Optics and Lasers in Engineering* 46.2, S. 106–116.
- Zhan, Z., An, J., Wei, Y., van Tran, T. und Du, H. (2017). „Inkjet-printed optoelectronics“. In: *Nanoscale* 9.3, S. 965–993.
- Zhang, Y. S., Courtier, N. E., Zhang, Z., Liu, K., Bailey, J. J., Boyce, A. M., Richardson, G., Shearing, P. R., Kendrick, E. und Brett, D. J. L. (2022). „A Review of Lithium–Ion Battery Electrode Drying: Mechanisms and Metrology“. In: *Advanced Energy Materials* 12.2, S. 2102233.
- Zhuldybina, M., Ropagnol, X. und Blanchard, F. (2021). „Towards in-situ quality control of conductive printable electronics: a review of possible pathways“. In: *Flexible and Printed Electronics* 6.4, S. 043007.
- Zuo, C., Qian, J., Feng, S., Yin, W., Li, Y., Fan, P., Han, J., Qian, K. und Chen, Q. (2022). „Deep learning in optical metrology: a review“. In: *Light, science & applications* 11.1, S. 39.

# Eigene Veröffentlichungen

## Journalbeiträge

- Smarsly, E., Daume, D., Braig, F., Koser, S., Dörsam, E., Bunz, W. H. F. (2018). „Poly(paraphenyleneethynylene)s as emitters in polymer LEDs“. In: *Journal of Materials Chemistry C* 6(41), S. 11002-11106.
- Merklein, L., Daume, D., Braig, F., Schliske, S., Rödlmeier, T., Mink, M., Kourkoulos, D., Ulber, B., Di Biase, M., Meerholz, K., Hernandez-Sosa, G., Lemmer, U., Sauer, H.M., Dörsam, E., Scharfer, P., Schabel, W. (2019). „Comparative Study of Printed Multilayer OLED Fabrication through Slot Die Coating, Gravure and Inkjet Printing, and Their Combination“. In: *Colloids and Interfaces*, 3(1), S. 32.
- Sauer, H.M., Braig, F., Dörsam, E. (2020). „Leveling and Drying Dynamics of Printed Liquid Films of Organic Semiconductor Solutions in OLED/OPV applications“. In: *Advanced Materials Technologies*, 6(2), S. 2000160.
- Braig, F., Narrog, F., Sauer, H.M., Dörsam, E. (2021). „Interferometric Imaging of Solvent Vapor of Evaporating Liquid Films“. In: *Langmuir*, 37(17), S. 5385-5392.
- Raju, S., Braig, F., Gründing, D., Fricke, M., Sauer, H.M., Dörsam, E., Bothe, D. (2023). „Imaging and simulation-based analysis of evaporation flows over wetting edges“. *In preparation*.

## Konferenz- und Tagungsbeiträge

- Feldmann, J., Braig, F., Spiehl, D., Dörsam, E., Blaeser A. (2022). „Generation of a paper embossing preview using 3D scanning and Fourier analysis“ In: *Advances in Printing and Media Technology - Proceedings of the 48th International Research Conference of iarigai*, Greenville, USA, 19–21 September 2022.

## Patente und Patentanmeldungen

- Schmitt-Lewen, M., Fernandes, F., Braig, F. (2021): „Dynamische Maske für Authentifizierung“. *DE 10 2020 206 060 B4*, Deutsches Patent- und Markenamt.
- Schmitt-Lewen, M., Braig, F. (2023): „Verfahren zum Bereitstellen eines Druckprodukts und zugehörigen Authentifikations-Informationen und Verfahren zum Authentifizieren eines Druckprodukts“. *DE 10 2022 105 489 B3*, Deutsches Patent- und Markenamt.

Schmitt-Lewen, M., Hüber, J., Braig, F. (2023): „Verfahren zum Herstellen und Serialisieren einer Mehrzahl von Druckprodukten“. *DE 10 2022 122 498 A1*, Deutsches Patent- und Markenamt.

# A Anhang

## A.1 Python Libraries

Tabelle A.1: Die Tabelle stellt die in der Auswertungsroutine genutzten Libraries und deren Version dar.

Bezeichnung	Bezeichnung/Wert
Python	3.8.8
matplotlib	3.5.2
natsort	8.1.0
numba	0.56.0
numpy	1.23.1
pandas	1.4.3
Pillow	9.2.0
pymba	0.3.7
scikit_learn	1.1.1
scipy	1.9.0
skimage	0.0
xlrd	2.0.1

## A.2 Technische Spezifikationen des Computers

Tabelle A.2: Die Tabelle zeigt die technischen Spezifikationen des für die Auswertung genutzten Computers.

Bezeichnung	Bezeichnung/Wert
Betriebssystem	Microsoft Windows Server 2019 Standard
Prozessor	Intel Core i7-8700K CPU 3,70 GHz, 6 Kerne, 12 logische Prozessoren
Motherboard	ROG STRIX Z370-H Gaming
Installierter Arbeitsspeicher	64,0 GB (DDR4 2400 MHz)
Grafikkarte	NVIDIA Quadro P2000 (5,0 GB GDDR5)

### A.3 Weitere Ergebnisse

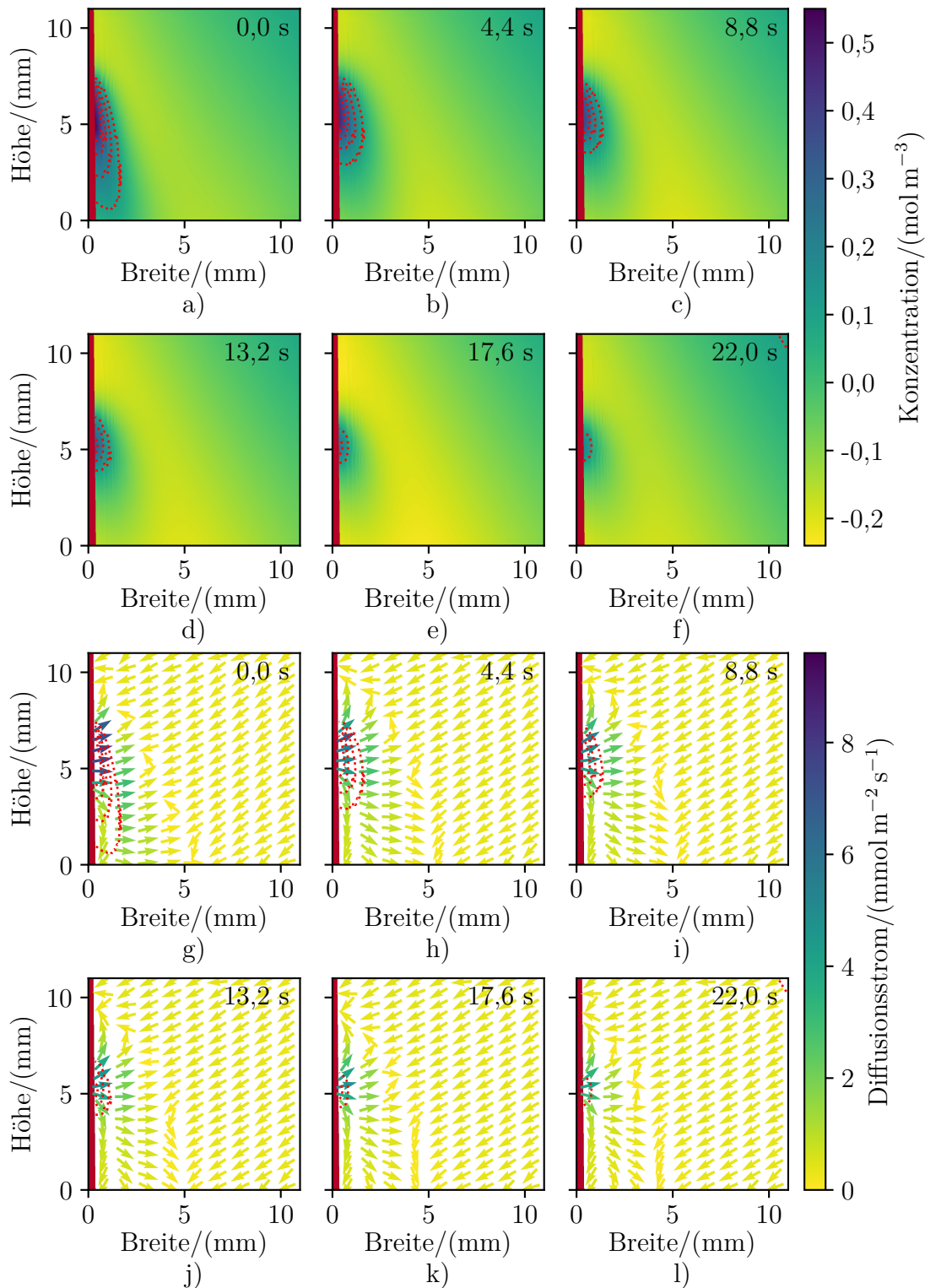


Abbildung A.1: Dargestellt ist die Lösungsmittelkonzentration über einer 3,0 mm breiten, verdunstenden Linie im zeitlichen Verlauf. Die Messdaten sind Bestandteil der Messreihe „N\_90“ (vgl. Kapitel 5.1.3).

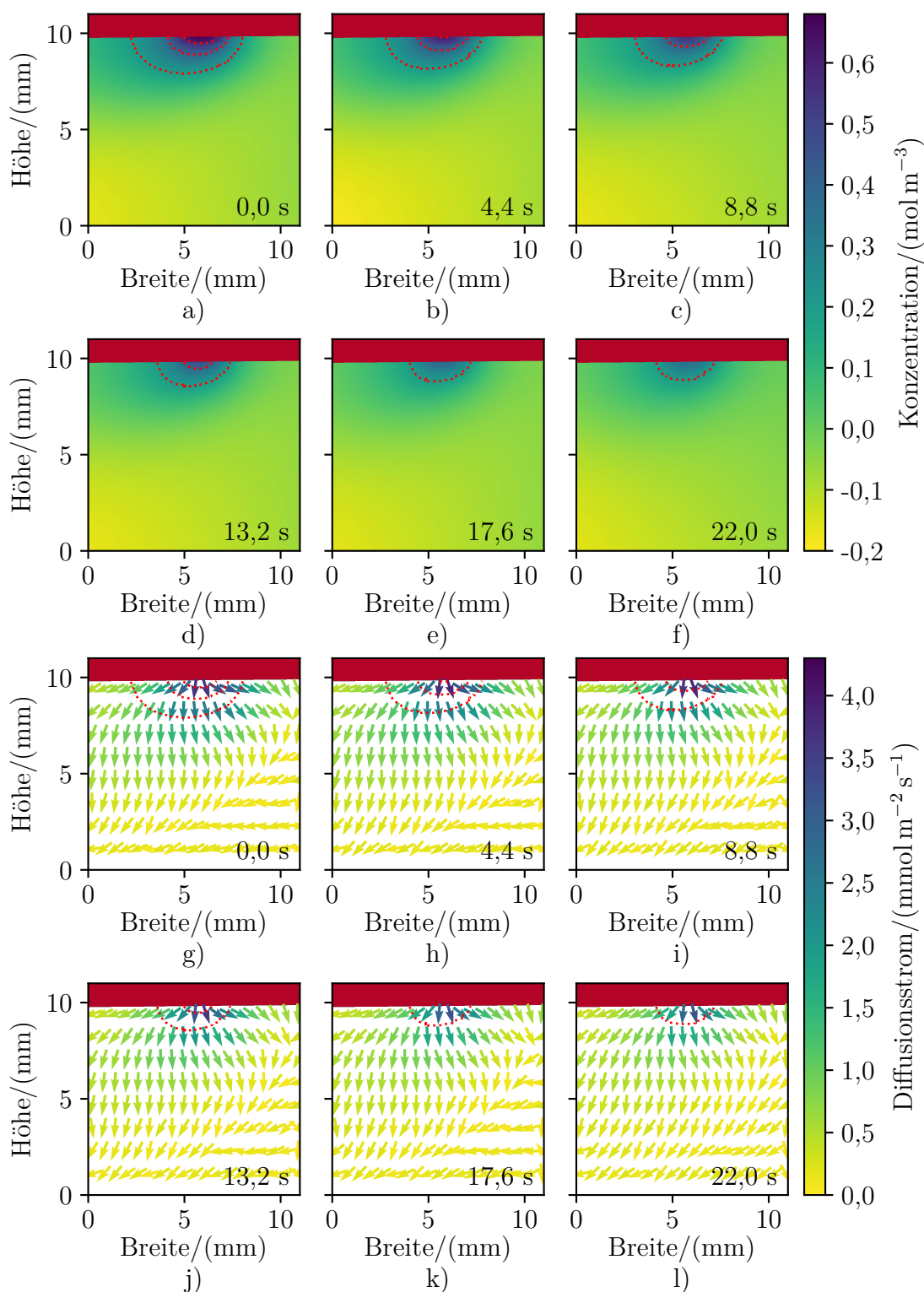


Abbildung A.2: Dargestellt ist die Lösungsmittelkonzentration über einer 3,0 mm breiten, verdunstenden Linie im zeitlichen Verlauf. Die Messdaten sind Bestandteil der Messreihe „N\_180“ (vgl. Kapitel 5.1.3).

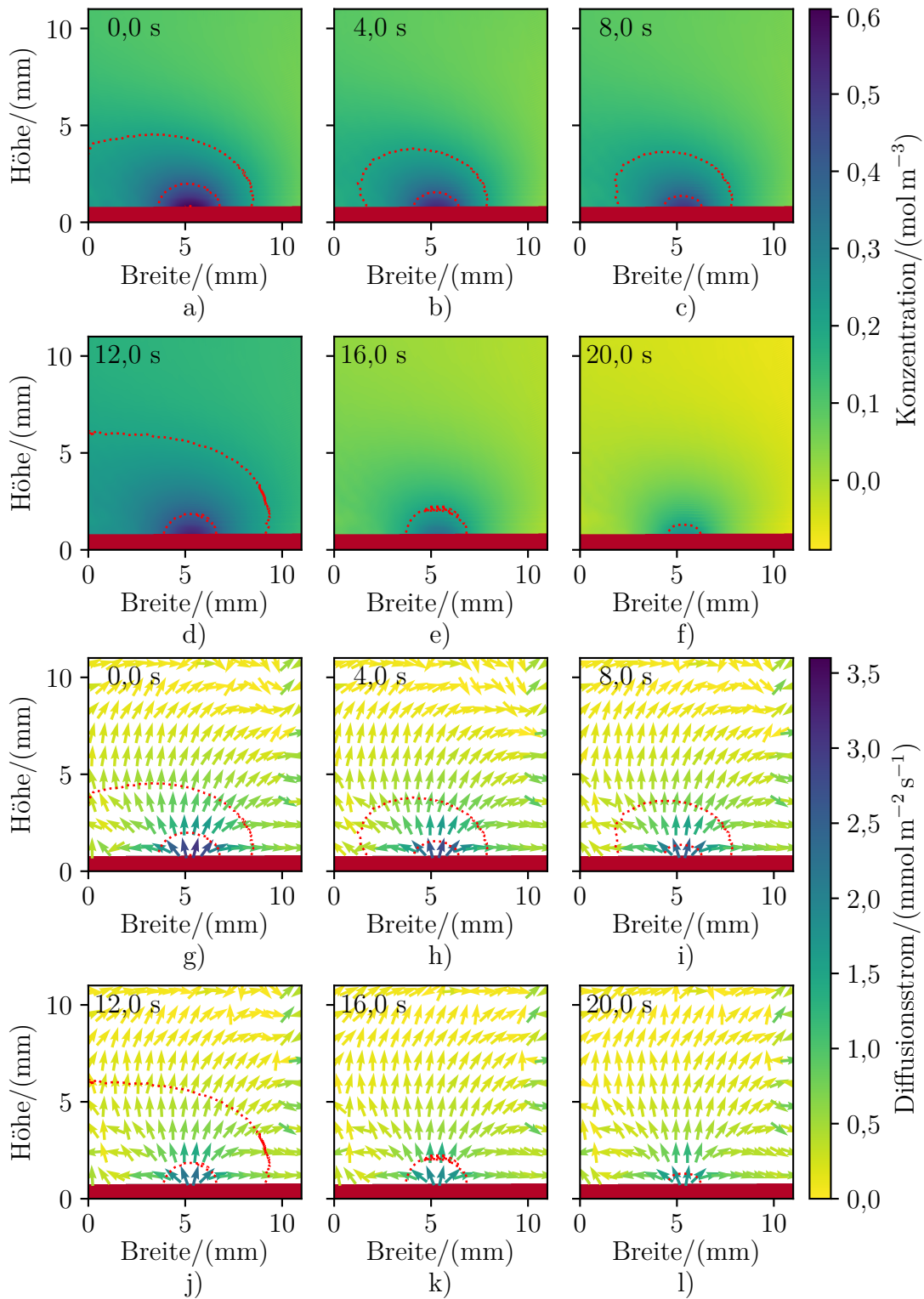


Abbildung A.3: Dargestellt ist die Lösungsmittelkonzentration über einer 2,4 mm breiten, verdunstenden Linie im zeitlichen Verlauf. Die Messdaten sind Bestandteil der Messreihe „B\_0“ (vgl. Kapitel 5.2.3).



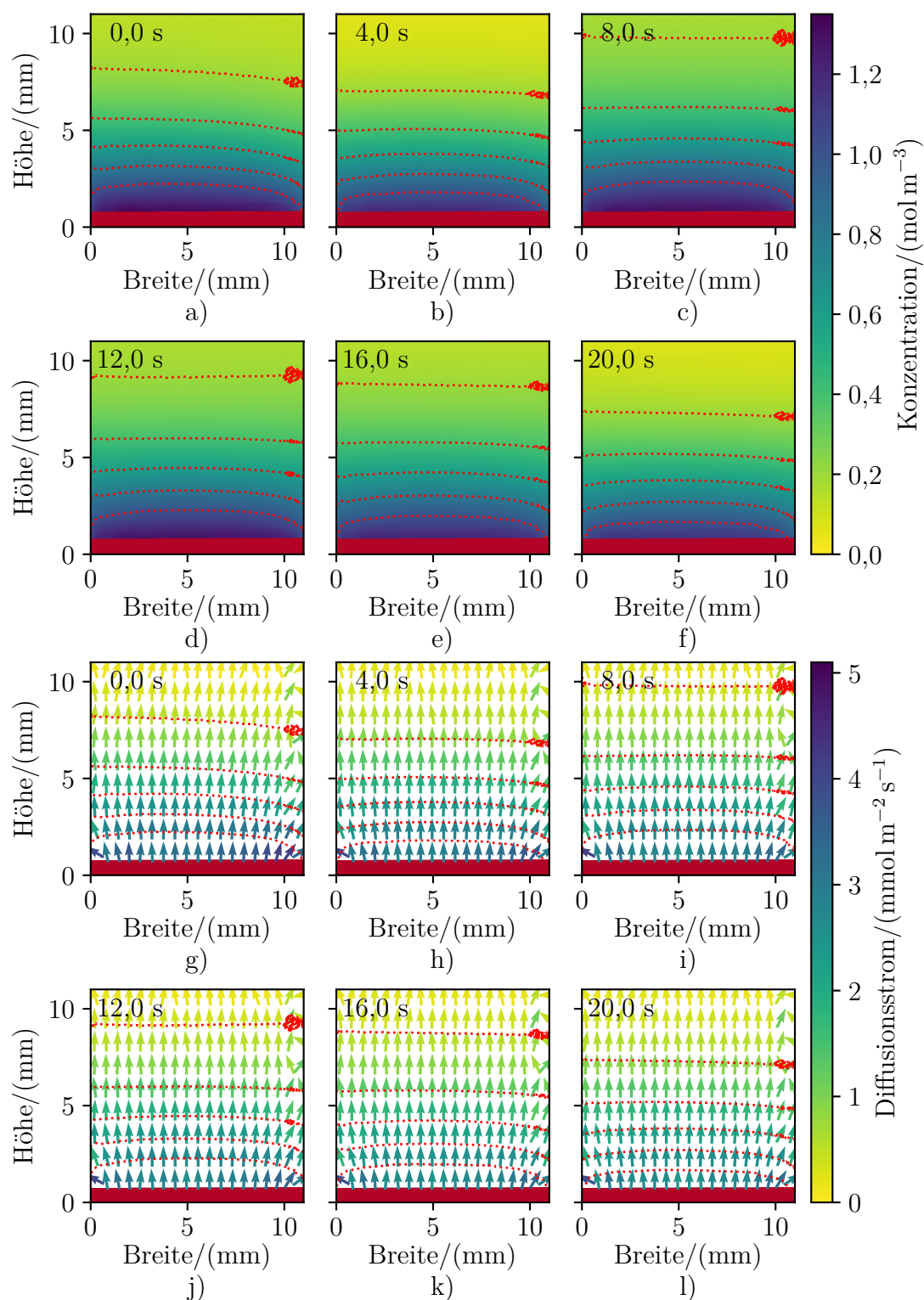


Abbildung A.4: Dargestellt ist die Lösungsmittelkonzentration über einer 11 mm breiten, verdunstenden Linie im zeitlichen Verlauf. Die Messdaten sind Bestandteil der Messreihe „B\_0“ (vgl. Kapitel 5.2.3).