

(19)



(11)

EP 2 616 572 B1

(12)

EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag und Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung:
10.07.2019 Patentblatt 2019/28

(51) Int Cl.:
C25D 5/20 (2006.01) C25D 21/10 (2006.01)

(21) Anmeldenummer: **11771050.9**

(86) Internationale Anmeldenummer:
PCT/EP2011/066251

(22) Anmeldetag: **19.09.2011**

(87) Internationale Veröffentlichungsnummer:
WO 2012/035172 (22.03.2012 Gazette 2012/12)

(54) ANORDNUNG UND VERFAHREN ZUR BEEINFLUSSUNG DER KINETIK CHEMISCHER REAKTIONEN MITTELS AKUSTISCHER OBERFLÄCHENWELLEN

ASSEMBLY AND METHOD FOR INFLUENCING THE KINETICS OF CHEMICAL REACTIONS BY MEANS OF ACOUSTIC SURFACE WAVES

SYSTÈME ET PROCÉDÉ PERMETTANT D'AGIR SUR LA CINÉTIQUE DE RÉACTIONS CHIMIQUES AU MOYEN D'ONDES ACOUSTIQUES DE SURFACE

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO PL PT RO RS SE SI SK SM TR

(74) Vertreter: **Maikowski & Ninnemann**
Patentanwälte Partnerschaft mbB
Postfach 15 09 20
10671 Berlin (DE)

(30) Priorität: **17.09.2010 DE 102010040996**

(56) Entgegenhaltungen:
EP-A2- 0 890 658 DE-A1-102007 043 563
RU-C1- 2 353 713 US-A1- 2003 064 586
US-A1- 2004 022 957 US-A1- 2004 168 706
US-A1- 2004 168 706 US-A1- 2005 227 488
US-B1- 6 368 482

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
24.07.2013 Patentblatt 2013/30

(73) Patentinhaber: **Hochschule für angewandte Wissenschaften**
Fachhochschule Coburg
96450 Coburg (DE)

• **JENS GEORG KAUFMANN ET AL: "Megasonic agitation for enhanced electrodeposition of copper", MICROSYSTEM TECHNOLOGIES ; MICRO AND NANOSYSTEMS INFORMATION STORAGE AND PROCESSING SYSTEMS, SPRINGER, BERLIN, DE, Bd. 15, Nr. 8, 2. Juni 2009 (2009-06-02), Seiten 1245-1254, XP019719778, ISSN: 1432-1858**

(72) Erfinder:
• **LINDNER, Gerhard**
96450 Coburg (DE)
• **KREMPEL, Sandro**
96515 Judenbach (DE)
• **SCHMIDT, Katrin**
96523 Steinach (DE)

EP 2 616 572 B1

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents im Europäischen Patentblatt kann jedermann nach Maßgabe der Ausführungsordnung beim Europäischen Patentamt gegen dieses Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist. (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine Anordnung zur Beeinflussung der Kinetik chemischer Reaktionen mittels akustischer Oberflächenwellen gemäß Anspruch 1 sowie ein Verfahren gemäß Anspruch 5. Insbesondere betrifft die Erfindung ein Verfahren basierend auf dem Einsatz akustischer Oberflächenwellen, über welches insbesondere chemische Reaktionen in Ihrem Ablauf beeinflusst werden können und damit die Effizienz dieser Reaktionen gesteigert werden kann (Beschleunigung der Reaktionsprozesse, erhöhter Stoffumsatz usw.).

[0002] Beim Ablauf chemischer Reaktionen bestimmt grundsätzlich der langsamste Reaktionsschritt die Kinetik der Gesamtreaktion. In elektrochemischen Prozessen beispielsweise wird die Geschwindigkeit der Gesamtreaktion daher vor allem durch die Rate bestimmt, mit welcher die elektrochemisch aktiven Teilchen zur Arbeitselektrode transportiert werden. Ist diese Rate nicht ausreichend, so nimmt bei konstanter Spannung der Strom über die Zeit kontinuierlich ab. Diese Abhängigkeit der Geschwindigkeit ist in der Literatur beschrieben (V.M. Schmidt: Elektrochemische Verfahrenstechnik. Grundlagen, Reaktionstechnik, Prozeßoptimierung. WILEY-VHC Verlag ;2004; ISBN-Nr.: 9783527299584)

[0003] Der Grund für diese Abnahme des Stroms liegt in der Ausbildung einer sogenannten Nernstschen Diffusionsschicht an der Grenzfläche Elektrode/Elektrolyt begründet. In dieser Diffusionsschicht findet nahezu keine Strömung statt und der Stofftransport kann alleine über Diffusionsprozesse geschehen. Die Ausbildung dieser Diffusionsschicht erfolgt dadurch, dass es gerade bei sehr hohen Stromdichten und einer schnellen Entladung von elektrochemisch aktiven Teilchen an der Elektrode vorkommt, dass die Elektrolytkonzentration an der Elektrodenoberfläche sehr stark abnimmt und dadurch ein Konzentrationsgradient zwischen Elektrode und Elektrolyt entsteht (vgl. C. Czeslik; H. Seemann; R. Winter: Basiswissen physikalische Chemie. Vieweg+Teubner Verlag; 4. Auflage; 2010; ISBN-Nr.: 978-3-8348-0937-7).

[0004] Dieser Gradient ist die treibende Kraft für die Nachlieferung von weiteren elektrochemisch aktiven Teilchen zur Elektrode und bestimmt die Geschwindigkeit, mit welcher die Reaktion abläuft. Aus der Literatur ist bekannt, dass über den Einsatz von Ultraschall die sich ausbildende Grenzschicht und damit die chemische Reaktion beeinflusst werden kann. In der Regel wird dabei Hochleistungsultraschall im Frequenzbereich von 20 KHz bis 2 MHz mithilfe von Ultraschallhörnern (sog. Sonotroden) auf die Elektrode eingebracht, dabei muss die Sonotrode jedoch direkt an bzw. in die Nähe der Elektrode gebracht werden, was meist durch Eintauchen der Sonotrode in den Elektrolyten geschieht.

[0005] Das Dokument EP 0 890 658 A2 beschreibt eine galvanische Zelle mit einem Ultraschalltransducer. US 6 368 482 B1 offenbart ein System und Verfahren zur galvanischen Schichterzeugung unter dem Einfluss von akustischen Wellen. Darüber hinaus sind auch aus den

Druckschriften US 2005/227488 A1, US 2004/022957 A1, US 2003/064586 A1, RU 2 353 713 C1 und dem Artikel JENS GEORG KAUFMANN ET AL: "Megasonic agitation for enhanced electrodeposition of copper", MICROSYSTEM TECHNOLOGIES; MICRO AND NANOSYSTEMS INFORMATION STORAGE AND PROCESSING SYSTEMS, SPRINGER, BERLIN, DE, Bd. 15, Nr. 8, 2. Juni 2009 (2009-06-02), Seiten 1245-1254 Beschichtungsverfahren unter der Anwendung von Schallwellen bekannt.

[0006] Des Weiteren offenbart die Druckschrift DE 10 2007 043563 A1 ein Verfahren zum Ätzen, Galvanisieren, Reinigen und Entwickeln von Fotolack mit Ultraschallunterstützung. Die betrifft ein Verfahren zur Metallabscheidung. Aus der US 2004/0168706 A1 ist ein Reinigungsverfahren unter der Verwendung von Ultraschallwellen bekannt.

[0007] Das der Erfindung zugrundeliegende Problem besteht darin, eine Anordnung und ein Verfahren bereitzustellen, die es ermöglichen, auf möglichst einfache und effektive Art und Weise chemische Reaktionen beeinflussen zu können.

[0008] Dieses Problem wird durch die Anordnung mit den Merkmalen des Anspruchs 1 sowie durch das Verfahren mit den Merkmalen des Anspruchs 5 gelöst. Weiterbildungen der Erfindungen sind in den anhängigen Ansprüchen angegeben.

[0009] Danach wird eine Anordnung zum Durchführen einer chemischen Reaktion bereitgestellt, mit

- einem Reaktionsgefäß, in dem mindestens eine aktive Fläche, die wenigstens abschnittsweise mit einem Fluid in Kontakt ist, angeordnet ist,
- Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen in der mindestens einen aktiven Fläche, wobei zumindest ein Teil der in der mindestens einen aktiven Fläche angeregten Oberflächenwellen in Volumenschallwellen innerhalb des Fluids umgewandelt wird, so dass
- eine an der mindestens einen aktiven Fläche vorgehende chemische Reaktion oder ein dort vorgehender physikalischer Vorgang durch die Oberflächenwellen in der mindestens einen aktiven Fläche und/oder durch die Volumenschallwellen in dem Fluid beeinflusst, insbesondere beschleunigt, wird.

[0010] Die Mittel zum Erzeugen von Oberflächenwellen umfassen insbesondere einen akustischen Wandler, der ein elektrisches Signal in Schwingungen umsetzt, die auf die aktive Fläche übertragen werden. Beispielsweise handelt es sich bei dem Wandler um einen Interdigitalwandler, mit dem z.B. auch in aktiven Flächen aus einem nichtpiezoelektrischen Material Oberflächenschallwellen angeregt werden können. Durch Schalleintrag in das Fluid in Form eines Elektrolyten, der durch die weiter unten erläuterte Konversion von Oberflächenschallwellen in Volumenschallwellen erfolgt, können an der Grenzfläche zwischen der aktiven Fläche und dem Fluid "En-

ergie-Hotspots" entstehen, in welchen verschiedene Phänomene auftreten, die die ablaufende chemische Reaktion beeinflussen können. Dies ist zum einen der Effekt des "Acoustic streaming", zum anderen turbulente Konvektion, Kavitation sowie Mikroströmungen. Bedingt durch die genannten Effekte konnte ein erhöhter Masse-transport experimentell nachgewiesen werden, welcher durch eine Ausdünnung der oben beschriebenen Nernst-schen Diffusionsschicht begründet werden kann.

[0011] All die genannten Effekte wirken sich z.B. folgendermaßen auf ablaufende Reaktionen aus (vgl. C.E. Banks; R.G. Compton: Ultrasonically Enhanced Voltam-metric Analysis and Applications: An Overview. Electro-analysis 15(5- 6):329-346, 2003):

- der Stoffaustausch und Wärmeaustausch wird erhöht, die an der aktiven Fläche ablaufenden Diffusi-onsprozesse werden beschleunigt
- der Stoffumsatz wird bedingt durch die erhöhte Durchmischung und die ultraschallbedingte Bildung von Radikalen ebenfalls erhöht;
- die Reaktionsmechanismen an der aktiven Fläche werden verändert;
- es entsteht eine geringere Überspannung an der ak-tiven Fläche;
- es kann eine erhöhte Oberflächenaktivierung der ak-tiven Fläche auftreten;
- durch Ultraschall können Emulsionen von eigentlich nicht mischbaren Systemen erzeugt werden

[0012] Darüber hinaus kann z.B. in dem Bereich der Galvanotechnik Dicke, Qualität und Rate der metalli-schen Abscheidung erhöht werden. Auch die kathodi-sche Effizienz kann gesteigert werden, da sich die Was-serstoffblasenbildung oder die Bildung von Oxidschich-ten an der aktiven Fläche verringert. Auch in der organi-schen Chemie finden sich Anwendungen, z.B. bei der Elektrosynthese verschiedener organischer Verbindun-gen.

[0013] Ein weiteres Anwendungsgebiet der erfin-dungsgemäßen Anordnung ist die Polymerchemie. Dort kann eine verbesserte Emulsion von Substanzen, die für Polymerisationsreaktionen benötigt werden, erreicht werden. Weiterhin kann die Entstehung dünner Polymer-filme an der aktiven Fläche verhindert werden(z.B. an einer Elektrodenoberfläche), die die weitere Elektroden-reaktion beeinflussen.

[0014] Weiterhin könnte sich die Kapazität und Leb-ensdauer von Akkumulatoren steigern lassen und die Selbstentladungsrate des Akkus reduziert werden. Der-artige Effekte wurden im Prinzip von *Gavrila* beschrieben ("I. Gavrila: The influence of ultrasound on the capacity of lead accumulators. Ultrasonics 16(4):156-158. 1978" und "I. Gavrila: Prolongation of accumulator life using ultrasound, Ultrasonics 18(5):210-212, 1980").

[0015] Des Weiteren könnte bei Verwendung der erfindungsgemäßen Anordnung die katalytische Aktivität während einer Reaktion gesteigert werden.

[0016] Mit Hilfe der erfindungsgemäßen Anordnung ist es insbesondere möglich, auch Reaktionen zu beeinflus-sen, die nicht unmittelbar auf einem piezoelektrischen Substrat eines akustischen Wandlers ablaufen. Vielmehr kann der Wandler auf die aktive Fläche in Form einer Elektrode, die auch aus einem nicht piezoelektrischen Material bestehen kann, außen angeordnet (festgelegt) und Oberflächenwellen in der aktiven Fläche erzeugt werden. Mit dieser Technik ist es möglich, akustische Oberflächenwellen auf nichtpiezoelektrischen Substra-ten über von außen auf das Substrat aufgebraachte pie-zoelektrische Interdigitalwandler zu erzeugen, wobei es möglich ist, akustische Oberflächenwellen in nahezu al-len technischen Substraten (Metalle, Glas, Kunststoffe, Keramiken) anzuregen.

[0017] Der Typ der in der aktiven Fläche angeregten Oberflächenwellen hängt insbesondere von der Dicke der verwendeten Substrate und der akustischen Wellen-länge ab. Beispielsweise können Oberflächenwellen vom Typ Rayleigh-Wellen insbesondere bei dicken Sub-straten angeregt werden, d.h. falls die Substratdicke (die Dicke der aktiven Fläche) größer ist als die akustische Wellenlänge. Oberflächenwellen vom Typ Lamb-Wellen können bei dünnen Substraten angeregt werden, wobei die Substratdicke kleiner sein muss als die akustische Wellenlänge.

[0018] Weiterhin ist bekannt, dass akustische Ober-flächenwellen beim Kontakt mit Flüssigkeiten unter einem spezifischen Winkel, dem sog. Rayleighwinkel, in die Flüssigkeit auskoppeln (Modenkonzersion), aber um-gekehrt bei Kontakt mit Festkörpern auch wieder einkoppeln (umgekehrte Modenkonzersion) und auf diesem festen Substrat erneut eine Oberflächenwelle erzeugen können, wie bereits von *Lindner et al.* beschrieben (vgl. G. Lindner: Sensors and actuators based on surface acoustic waves propagating along solidliquid interfaces. J. Phys. D: Appl. Phys. 41:123002 (13pp), 2008).

[0019] Bei beiden Wellenmoden (Rayleigh-Wellen und Lamb-Wellen) finden unter bestimmten Bedingungen Wechselwirkungen mit einer die Oberfläche bedecken-den Flüssigkeit statt. Die akustische Oberflächenwelle koppelt in die Flüssigkeit aus, sobald die Schallgeschwin-digkeit der Flüssigkeit kleiner ist als die Schallgeschwin-digkeit (Ausbreitungsgeschwindigkeit) der Oberflächen-welle. Der Rayleigh-Winkel für diese Auskopplung ist charakteristisch und durch das Verhältnis dieser Ge-schwindigkeiten bestimmt ("akustisches Brechungsge-setz"), wobei sich der Rayleigh-Winkel Θ gemessen in Bezug auf eine vertikale Referenzlinie zu der Oberfläche des Substrats, bestimmt durch:

$$\Theta = \arcsin(c_M/c_S),$$

wobei c_M die Schallgeschwindigkeit der Volumenwelle innerhalb der Flüssigkeit ist und c_S die Schallgeschwin-digkeit der akustischen Oberflächenwelle in dem Subst-

rat ist.

[0020] Sobald die oben genannten Bedingungen erfüllt sind, wird zumindest ein Teil der Energie der akustischen Oberflächenwellen, die durch einen Sender, wie beispielsweise einen Interdigitalwandler erzeugt werden, in Volumenwellen innerhalb der Flüssigkeit umgewandelt (Modenkonversion). Die Volumenwellen werden somit unter dem Rayleigh - Winkel in die Flüssigkeit abgestrahlt und dadurch wird die Energie der verbleibenden akustischen Oberflächenwelle reduziert.

[0021] Dieser Effekt wird mit dem Vermögen der Oberflächenwellen, in Flüssigkeiten Strömungen zu erzeugen, für das erfindungsgemäße Verfahren kombiniert. In einer Kombination aus beiden Effekten wird durch das erfindungsgemäße Verfahren die Kinetik chemischer Prozesses verändert, ohne direkt über eingebrachte Bauteile in den Prozess eingreifen zu müssen oder dass die Elektronik direkt mit den chemisch aktiven Substanzen in Kontakt kommt.

[0022] Problematisch an den bekannten Systemen ist, dass die Schallwandler, welche die Oberflächenwellen erzeugen, inklusive der dazugehörigen Elektronik mit den chemisch aktiven Substanzen direkt in Berührung kommen oder eventuelle Einbauteile den Versuchsaufbau beeinträchtigen.

[0023] Es entfällt somit die Notwendigkeit, auf der aktiven Fläche eine Beschichtung mit Katalysatorsubstanzen vorzusehen. Daher kann auch der mit einer Beschichtung verbundene Nachteil reduziert oder eliminiert werden, dass die Reaktion, die es über Oberflächenwellen zu beeinflussen gilt, direkt in der Nähe bzw. auf dem piezoelektrischen Substrat stattfinden muss und somit das komplette Versuchsdesign und die Reaktionsparameter an die Geometrie des piezoelektrischen Interdigitalwandlers angepasst werden müssen. Bereits bestehende Versuchsabläufe und Aufbauten können über diese Methode nicht ohne eine massive Änderung des kompletten Versuchsaufbaus beeinflusst werden.

[0024] Darüber hinaus kann der Zeitaufwand für das Erzeugen der selektiven katalytischen Schicht entfallen. Entsprechend entfällt auch ein regelmäßiges Erneuern der katalytischen Schutzschicht.

[0025] Unter einer "aktiven Fläche" ist insbesondere die Oberfläche eines Festkörpers (beispielsweise aus Metall, Glas, Kunststoff, Keramik) zu verstehen, an der bzw. in deren nächster Umgebung eine chemische Reaktion oder ein physikalischer Vorgang abläuft und/oder angeregt bzw. beeinflusst werden kann.

[0026] Dabei können beispielsweise auch Stoffe im Zuge der chemischen Reaktion sich an der aktiven Fläche ablagern oder die aktive Fläche kann im Lauf der chemischen Reaktion verbraucht werden. Bei dem innerhalb des Reaktionsgefäßes angeordneten Fluid kann es sich beispielsweise um Gase handeln, aber auch um Flüssigkeiten, die gelöste organische oder anorganische Substanzen (wie beispielsweise Salze) enthalten können. Derartige Flüssigkeiten wären beispielsweise Wasser, Ammoniak, THF, Aceton, Acetonitril, DMSO, Hexan,

Toluol oder Benzol. Alternativ kann es sich bei dem Fluid auch um Schmelzen organischer oder anorganischer Substanzen bzw. Metalle handeln.

[0027] Das Reaktionsgefäß weist insbesondere einen Boden auf, wobei gegenüber dem Boden eine Öffnung zum Einfüllen des Fluids vorhanden ist. Vom Boden steht eine Seitenwand des Reaktionsgefäßes ab, die zusammen mit dem Boden ein inneres Volumen des Reaktionsgefäßes begrenzt. Die aktive Fläche befindet sich z.B. zumindest teilweise in dem inneren Volumen des Reaktionsgefäßes.

[0028] Die Anordnung zur Durchführung einer chemischen Reaktion weist weiterhin ein Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen auf, welches geeignet ist, akustische Oberflächenwellen innerhalb der mindestens einen aktiven Fläche anzuregen, wobei zumindest ein Teil der in der mindestens einen aktiven Fläche angeregten Oberflächenwellen in akustische Volumenwellen (Volumenschallwellen) innerhalb des Fluids umgewandelt wird.

[0029] Dadurch wird gewährleistet, dass eine an der mindestens einen aktiven Fläche vorgehende chemische Reaktion oder ein vorgehender physikalischer Vorgang durch die Oberflächenwellen in der mindestens einen aktiven Fläche und/oder durch die Volumenschallwellen in dem Fluid beeinflusst werden. Insbesondere wird dadurch die Reaktionsgeschwindigkeit erhöht. Auch ein erhöhter Stoffaustausch oder Wärmeaustausch bzw. eine erhöhte Durchmischung oder aber eine Änderung der Reaktionsmechanismen sind beispielsweise möglich.

[0030] Gemäß der Erfindung weisen die Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen mindestens einen Sender auf. Dabei ist der Sender insbesondere in Form eines Interdigitalwandlers ausgebildet.

[0031] Denkbar ist auch, dass sich ein elektrisch isolierendes Substrat an der dem Reaktionsgefäß zugewandten Seite (der Montageseite) der mindestens einen aktiven Fläche erstreckt. Insbesondere kann das Substrat in Form eines Abschnitts einer Wandung des Reaktionsgefäßes ausgebildet sein.

[0032] Möglich ist auch, dass zwischen dem Substrat und der mindestens einen aktiven Fläche eine Zwischenschicht angeordnet ist, über die zumindest ein Teil der in dem Substrat angeregten Oberflächenwelle in die mindestens eine aktive Fläche einkoppelt.

[0033] Die aktive Fläche befindet sich teilweise in Kontakt mit dem Fluid und das Mittel zur Erzeugung von akustischen Oberflächenwellen ist an der aktiven Fläche in dem Bereich angeordnet, der nicht in Kontakt mit dem Fluid steht.

[0034] In einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung ist an dem Reaktionsgefäß ein Temperaturregelmittel angeordnet, welches geeignet ist, die Temperatur der mindestens einen aktiven Fläche und/oder des Fluids zu erhöhen oder zu erniedrigen.

[0035] Dies kann beispielsweise dadurch erfolgen, dass innerhalb der aktiven Fläche ein Hohlraum vorge-

sehen ist, mittels dessen ein Kühlmittel über ein Kühlkreislaufsystem durch die aktive Fläche eingeleitet wird und somit die aktive Fläche gekühlt wird. Auch ist es möglich, dass das Fluid direkt eine Temperaturerhöhung erfährt, beispielsweise mittels eines Tauchsieders oder indirekt mittels Öl- oder Wasserbädern, die zuerst das Reaktionsgefäß erhitzen und somit indirekt das Fluid eine Temperaturerhöhung über Wärmeleitung erhält. Es kann auch eine vergleichbare Kühlung des Fluids durch ein Eis- bzw. Trockeneisbad oder beispielsweise mittels einer Aceton-Ether-Mischung, die mittels flüssigen Stickstoffs auf einen Tieftemperaturbereich abgekühlt wird, erfolgen.

[0036] Alternativ oder zusätzlich kann vorgesehen sein, dass das Reaktionsgefäß innerhalb eines Gehäuses angeordnet ist, wobei an dem Gehäuse ein Druckkontrollmittel vorgesehen ist, welches geeignet ist, einen Druck innerhalb des Gehäuses bzw. innerhalb des Reaktionsgefäßes oberhalb oder unterhalb des Atmosphärendrucks einzustellen. Dies kann beispielsweise mittels üblicher Hochdruckpumpen bzw. Vakuumpumpen erfolgen.

[0037] Gemäß der Erfindung ist innerhalb des Reaktionsgefäßes eine zweite aktive Fläche angeordnet, wobei das Fluid zwischen der ersten und der zweiten aktiven Fläche angeordnet ist. Dabei regen die Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen in der ersten und/oder der zweiten aktiven Fläche akustische Oberflächenwellen an, wobei zumindest ein Teil der in der ersten und/oder der zweiten aktiven Fläche angeregten Oberflächenwellen in akustische Volumenwellen (Volumenschallwellen) in dem zwischen den aktiven Flächen befindlichen Fluid umgewandelt wird.

[0038] Dadurch wird eine an der ersten und/oder zweiten aktiven Fläche vorgehende chemische Reaktion oder ein vorgehender physikalischer Vorgang durch die Oberflächenwellen in der ersten und/oder der zweiten aktiven Fläche und/oder durch die Volumenschallwellen in dem Fluid beeinflusst. Insbesondere wird dabei die chemische Reaktion oder der physikalische Vorgang beschleunigt.

[0039] Die erste und die zweite aktive Fläche sind jeweils als Elektrode ausgebildet, die über Spannungsquellen miteinander verbunden sind. Zudem ist das Fluid als ein Elektrolyt ausgebildet. Dabei erzeugt das Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen in der ersten und/oder der zweiten Elektrode akustische Oberflächenwellen, wobei zumindest ein Teil der in der ersten und/oder der zweiten Elektrode angelegten Oberflächenwellen in akustische Volumenwellen (Volumenschallwellen) in dem zwischen den Elektroden befindlichen Elektrolyten umgewandelt wird. Dadurch wird eine in dem Elektrolyten vorgehende chemische Reaktion durch die Oberflächenwellen in der ersten und/oder der zweiten Elektrode und/oder die Volumenschallwellen in dem Elektrolyten beeinflusst. Insbesondere wird die chemische Reaktion beschleunigt.

[0040] Dabei kann weisen die Mittel zum Erzeugen von

akustischen Oberflächenwellen mindestens einen Sender, wie erwähnt insbesondere in Form eines Interdigitalwandlers, auf. In einer alternativen Ausgestaltungsform ist der Sender auf einer dem Elektrolyten abgewandten Seite der ersten Elektrode angeordnet.

[0041] In einer weiteren Anordnung kann sich ein elektrisch isolierendes Substrat an einer dem Elektrolyten abgewandten Seite der ersten Elektrode erstrecken. Dabei kann das elektrisch isolierende Substrat insbesondere in Form eines Abschnitts einer Wandung eines Reaktionsgefäßes vorgesehen sein.

[0042] Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Beeinflussung der Kinetik chemischer Reaktionen mittels akustischer Oberflächenwellen, mit den Schritten

- Bereitstellen mindestens einer aktiven Fläche;
- Anordnen der mindestens einen aktiven Fläche innerhalb eines Fluids;
- Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen in der mindestens einen aktiven Fläche, wobei zumindest ein Teil der in der mindestens einen aktiven Fläche angeregten Oberflächenwellen in akustische Volumenwellen (Volumenschallwellen) innerhalb des Fluids umgewandelt wird, so dass
- eine in dem Fluid vorgehende chemische Reaktion oder ein vorgehender physikalischer Vorgang durch die Oberflächenwellen in der mindestens einen aktiven Fläche und/oder die Volumenschallwellen in dem Fluid beeinflusst, insbesondere beschleunigt wird.

[0043] Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren werden akustischen Oberflächenwellen direkt auf die chemisch aktive Fläche (eine Elektrode) übertragen und beeinflussen dort gezielt die Reaktion. Dabei wird der Schall im Idealfall von außen in das Reaktionssystem eingebracht, so dass die Schallwandler, welche die Oberflächenwellen erzeugen, inklusive der dazugehörigen Elektronik nicht mit den chemisch aktiven Substanzen direkt in Berührung kommen oder eventuelle Einbauteile den Versuchsaufbau beeinträchtigen. Das erfindungsgemäße Verfahren soll in erster Linie bei elektrochemischen Prozessen Anwendung finden, ist allerdings auch für andere chemische Reaktionsabläufe geeignet. Weiterhin ist das Verfahren flexibel an unterschiedliche Versuchsaufbauten anpassbar, so dass bereits bestehende chemische Anlagen unverändert bleiben können.

[0044] Gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren sind die folgenden Schritte vorgesehen:

- Bereitstellen einer ersten und zweiten aktiven Fläche;
- Anordnen eines Fluids zwischen der ersten und der zweiten aktiven Fläche;
- Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen in der ersten und/oder zweiten aktiven Fläche, wobei zumindest ein Teil der in der ersten und/oder zweiten aktiven Fläche angeregten Oberflächenwellen in

akustische Volumenschallwellen in dem zwischen den aktiven Flächen befindlichen Fluid umgewandelt wird, wobei

- eine in dem Fluid vorgehende chemische Reaktion oder ein vorgehender physikalischer Vorgang durch die Oberflächenwellen in der ersten aktiven Fläche und/oder die Volumenschallwellen in dem Fluid beeinflusst wird. Insbesondere können die Geschwindigkeiten erhöht werden.

[0045] In einer weiteren Ausgestaltung erfolgt ein

- Anlegen einer Spannung an die erste und die zweite Elektrode.

[0046] Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren werden akustischen Oberflächenwellen direkt auf die chemisch aktive Fläche (eine Elektrode) übertragen, um dort gezielt die Reaktion zu beeinflussen. Dabei wird der Schall im Idealfall von außen in das Reaktionssystem eingebracht, so dass die Schallwandler, welche die Oberflächenwellen erzeugen inklusive der dazugehörigen Elektronik nicht mit den chemisch aktiven Substanzen direkt in Berührung kommen oder eventuelle Einbauteile den Versuchsaufbau beeinträchtigen.

[0047] Insbesondere durch das Vermögen der Oberflächenwellen, bei Kontakt mit Flüssigkeiten als Volumenwelle auszukoppeln und umgekehrt beim Auftreffen auf feste Substrate wieder einzukoppeln und dort erneut eine Oberflächenwelle zu erzeugen, wird es ermöglicht, den Schall auch direkt auf eine oder mehrere chemisch aktive Flächen zu übertragen. Dabei ist es nicht notwendig, wie bei den meisten sonokinetischen Verfahren, eine Sonotrode in das Medium einzubringen, sondern es wird ein piezoelektrischer Interdigitalwandler von außen auf die Elektrode aufgebracht, welcher dort die Oberflächenwellen erzeugt. Eine Verwendung bei Gasen ist ebenfalls möglich.

[0048] Das neue bei dem erfindungsgemäßen Verfahren und der erfindungsgemäßen Anordnung besteht zum einen darin, dass die Schalleinstrahlung in das Reaktionssystem nicht über in das System eingebrachte Komponenten geschieht (z.B. Sonotroden), sondern der Schall über außen an das System direkt an der Elektrode) angebrachte spezielle piezoelektrische Interdigitalwandler, welche akustische Oberflächenwellen anregen, geschieht. Das heißt, eine im Inneren ablaufende Reaktion kann über ein außen angebrachtes Bauteil beeinflusst werden, was in einzelnen Experimenten durch eine starke Steigerung der Reaktionsrate bereits gezeigt werden konnte, wie oben bereits erläutert.

[0049] Weiterhin ist die Schalleinstrahlung nicht diffus auf die Elektrode oder eine andere chemisch aktive Fläche gerichtet, wie es bei einem Ultraschallhorn der Fall ist; vielmehr wird der Schall insbesondere über Effekte wie Modenkonversion und umgekehrte Modenkonversion direkt auf die Elektrode geleitet, wo ebenfalls wieder eine Oberflächenwelle erzeugt wird. Diese Effekte erlau-

ben es, direkt an der Elektrode die ablaufenden Prozesse zu beeinflussen und damit gezielt dort zu wirken, wo sich den Stofftransport limitierende Grenzschichten oder ähnliche Phänomene ausbilden.

[0050] Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren und der erfindungsgemäßen Anordnung wird jedoch ein einfaches piezoelektrisches Bauteil mitsamt zugehöriger Ansteuerelektronik auch auf nichtpiezoelektrische Substrate aufgebracht und es werden auf diesen Substraten Oberflächenwellen angeregt und damit Reaktionen, die außerhalb des piezoelektrischen Substrates ablaufen, beeinflusst.

[0051] Beim erfindungsgemäßen Verfahren und der erfindungsgemäßen Anordnung sind z.B. keine Änderungen an bereits bestehenden Versuchsaufbauten oder chemischen Prozessanlagen notwendig, da als Mittel zum Erzeugen der Oberflächenschallwellen ein piezoelektrischer Interdigitalwandler verwendet werden kann, der "von außen" an die Anlage angebracht werden kann. Damit müssen keine zusätzlichen Bauteile in das Reaktionssystem eingebracht werden, was Probleme mit Chemikalienbeständigkeit der Bauteile oder speziellen Anpassungen des Bauteils an die Geometrie des Versuchsaufbaus (damit die Reaktion durch das Bauteil nicht gestört wird) deutlich minimiert.

[0052] Ferner bietet das erfindungsgemäße Verfahren den Vorteil, dass es flexibel an unterschiedliche Aufbauten angepasst werden kann und es weiterhin nicht auf einen ganz bestimmten Bereich der Chemie oder ein ganz spezielles chemisches Verfahren festgelegt ist sondern vielfältig angewendet werden kann. Dasselbe ist für die erfindungsgemäße Anordnung zutreffend.

[0053] Folglich wird auf einfache Art und Weise eine chemische Reaktion oder ein physikalischer Vorgang innerhalb eines Reaktionsgefäßes durch ein gezieltes Anregen von akustischen Oberflächenwellen innerhalb mindestens einer oder mehrerer aktiver Flächen und/oder durch in einem Fluid erzeugte Volumenschallwellen beeinflusst, insbesondere beschleunigt. Dabei ist es nicht notwendig, dass das Mittel zur Erzeugung von akustischen Oberflächenwellen innerhalb des Reaktionsgefäßes insbesondere innerhalb des Reaktionsfluids angebracht werden muss. Dadurch wird vermieden, dass durch besonders aggressive chemische Vorgänge das Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen angegriffen wird bzw. derartige Einbauteile den Versuchsaufbau beeinträchtigen.

[0054] Insbesondere zeichnen sich die erfindungsgemäße Anordnung und das erfindungsgemäße Verfahren dadurch aus, dass eine gezielte und gesteuerte Anregung der aktiven Flächen mittels akustischer Oberflächenwellen erfolgt, die z.B. eine bessere Beeinflussung der chemischen Reaktionen ermöglicht als eine "Beschallung" über eine breite Fläche mittels beispielsweise eines Ultraschallhorns. Weiterhin ermöglicht der deutlich geringere Platzaufwand der erfindungsgemäßen Vorrichtung und des erfindungsgemäßen Verfahrens keine oder nur eine geringe Änderung eines bereits bekannten

Versuchsaufbaus.

[0055] Das erfindungsgemäße Verfahren (entsprechend auch die erfindungsgemäße Anordnung) kann insbesondere bei elektrochemischen Prozessen angewendet werden, es ist allerdings auch für andere chemische Reaktionsabläufe geeignet. Es kann Anwendung in nahezu allen Teilbereichen der Chemie finden, wo flüssige Medien und Grenzflächen im Spiel sind, wie oben bereits angedeutet, z.B.:

- Elektrochemie (z.B. Galvanotechnik, Akkumulatorindustrie usw.)
- Technische Chemie (Prozessoptimierung)
- Organische Chemie (z.B. Synthese organischer Substanzen)

[0056] Das Verfahren kann flexibel an unterschiedliche Versuchsaufbauten angepasst werden, so dass bereits bestehende chemische Anlagen im Wesentlichen unverändert bleiben können.

[0057] Die Erfindung wird im Folgenden anhand von Ausführungsbeispielen unter Bezugnahme auf die Figuren näher erläutert. Es zeigen:

Figur 1 eine schematische Ansicht einer Anordnung zum Durchführen einer chemischen Reaktion;

Figur 2 eine Abbildung des Strom-Spannungsverlaufes einer beispielhaften Anordnung gemäß Figur 1 im Vergleich mit einer Standardanordnung;

Figur 3 eine Abbildung einer Strom-Spannungskurve bei Anregung akustischer Oberflächenwellen der Anordnung gemäß Figur 1;

Figur 4 schematischer Aufbau einer Ausführungsform der Erfindung;

Fig. 5 eine Abwandlung der Fig. 4; und

Figur 6 eine Abbildung einer Stromkurve deren Einfluss die erfindungsgemäßen angeregten Oberflächenwellen zeigt.

[0058] Figur 1 zeigt eine Ausführungsform zum Durchführen einer chemischen Reaktion in einer schematischen Ansicht. Die Anordnung weist ein Reaktionsgefäß 8 auf, in dem eine erste und eine zweite aktive Fläche in Form einer ersten Elektrode 11 und einer zweiten Elektrode 12 angeordnet sind. Dabei ist zwischen der ersten und der zweiten Elektrode 11, 12 ein Fluid in Form eines Elektrolyten 31 angeordnet. Weiterhin weist die Anordnung ein an einer Seitenwand 81 des Reaktionsgefäßes 8 angeordnetes Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen - hier ein Interdigitalwandler 4 - auf, wobei der Interdigitalwandler 4 an der Seite (Außenseite) der Seitenwand 81 des Reaktionsgefäßes 8 angebracht ist, die von der ersten Elektrode 11 abgewandt ist.

[0059] Über den Interdigitalwandler werden in der Seitenwand 81 Oberflächenwellen 6 angeregt, wobei es sich bei den angeregten Oberflächenwellen insbesondere um Lamb-Wellen handelt, welche dann angeregt werden, wenn die Dicke des Substrates kleiner ist als die Wellenlänge. Durch die Inbetriebnahme des Interdigitalwandlers 4 werden zunächst in der Wand 81 des Reaktionsgefäßes 8, welches z.B. aus einer elektrisch isolierenden Substanz besteht (zum Beispiel ein Reaktionsgefäß aus Glas) Oberflächenwellen erzeugt.

[0060] Mit dem Reaktionsgefäß 8 ist die erste Elektrode 11, auf welcher sich eine Diffusionsgrenzschicht 311 ausbildet, über eine Zwischenschicht 51 verbunden. Diese Zwischenschicht 51 kann beispielsweise aus einer Flüssigkeit oder einem Gas bestehen. Denkbar ist auch, dass die Zwischenschicht 51 durch den Elektrolyten 31 gebildet wird.

[0061] Die in der Seitenwand 81 angeregten Oberflächenschallwellen koppeln zum Teil unter dem Rayleigh-Winkel in die Zwischenschicht 51 aus (Modenkonversion) und dann umgekehrt wieder in die Elektrode 11 ein, wobei in der Elektrode 11 ebenfalls Oberflächenwellen 6' angeregt werden. Die angeregte Oberflächenwelle 6 koppelt also in die Zwischenschicht 51 aus und erzeugt in der Zwischenschicht 51 gewissermaßen eine Volumenschallwelle (kleine Pfeile), welche wiederum in die erste Elektrode 11 eingekoppelt werden kann, um dort erneut eine akustische Oberflächenwelle 6' zu erzeugen.

[0062] An der Grenzschicht zwischen der ersten Elektrode 11 und dem Elektrolyten 31, an der sich eine Diffusionsgrenzschicht 311 ausgebildet hat, findet anschließend erneut der Prozess einer Modenkonversion statt, das heißt die Oberflächenwelle 6' in der Elektrode 11 koppelt unter einem bestimmten Winkel (Rayleigh Winkel) in das umgebende Medium, also den Elektrolyten 31, und damit auch in die Diffusionsgrenzschicht 311 aus und erzeugt in dem flüssigen Medium eine Volumenschallwelle 7.

[0063] Durch die Wechselwirkung der Schallwelle (Volumenschallwelle 7) mit der Diffusionsgrenzschicht 311 werden die dort ablaufenden chemischen Reaktionen positiv beeinflusst. Nach der Auskopplung der akustischen Oberflächenwelle 6' in den Elektrolyten 31 erfolgt wiederum eine Einkopplung der Schallwelle (Volumenschallwelle 7) in die zweite Elektrode 12, welche dort ebenfalls wieder die Anregung von Oberflächenwellen 6'' erzeugt.

[0064] Figur 2 zeigt, den Strom-Spannungsverlauf einer Anordnung vergleichbar der Figur 1 im Vergleich mit einer Standardanordnung (ohne Erzeugung von Oberflächenschallwellen).

[0065] Um zu zeigen, dass mittels piezoelektrischer Interdigitalwandler 4, die von außen an ein System angebracht werden, eine chemische Reaktion im Inneren dieses Gefäßes 8 positiv beeinflusst werden kann, wurde ein einfacher Elektropoliverversuch entsprechend dem Schema in Figur 1 aufgebaut, bei welchem bei konstanter Spannung ein von außen angebrachter piezoelektrischer

Interdigitalwandler 4 eingeschaltet und dessen Einfluss auf die Stromaufnahme dokumentiert wurde.

[0066] Der Versuchsaufbau bestand aus einer Cu/Au Elektropolierzelle, bei welcher durch Anlegen einer Gleichspannung Material von einer Kupferplatte abgetragen werden sollte. Das Kupfer fungierte hierbei als Anode (entspricht Elektrode 11 in Figur 1), die Kathode bestand aus einem Reingoldblech (entspricht Elektrode 12 in Figur 1). Bei der Polierzelle an sich handelt es sich um ein Becherglas, in welches auf dem Innenboden ein Kupferblech befestigt wurde. In rund 1 cm Entfernung von dem Kupferblech wurde ein Goldblech parallel zum Kupferblech positioniert. Als Elektrolyt 31 fungierte eine Lösung aus Salpetersäure (65%) und Methanol im Mischungsverhältnis 1:2, die in das Becherglas gefüllt wird, so dass das Goldblech damit überschichtet ist.

[0067] Auf dem Boden des Becherglases (auf der gegenüberliegenden Becherglaswand wie das Cu-Blech) wurde ein Interdigitalwandler 4 aufgeklebt, mit welchem Oberflächenwellen 6 erzeugt wurden. Der Interdigitalwandler 4 wurde hierbei mit einem kontinuierlichen Signal mit einer Spannung von 100 V Spitze-Spitze und einer Frequenz von 1 MHz angesteuert.

[0068] In Figur 2 ist der Verlauf einer Elektropolierkurve mit und ohne Ultraschalleintrag (SAW) dargestellt. Zunächst wird die Spannung so lange schrittweise erhöht, bis die Stromstärke auch bei Spannungserhöhung nicht weiter ansteigt, was im Diagramm mit Phase 1 gekennzeichnet ist. In der Plateauphase, in welcher bei Spannungserhöhung die Stromstärke konstant bleibt, bildet sich die Diffusionsgrenzschicht aus, welche den Stofftransport limitiert, sie ist als Phase 2 gekennzeichnet. In einem Elektropolierversuch ohne Schalleintrag (graue Kurve) bleibt der Strom in der Plateauphase etwa bei 0,9 A konstant. Wird bei einem zweiten Versuch zu Beginn der Plateauphase der Interdigitalwandler 4 eingeschaltet (schwarze Kurve), so steigt I auf etwa 1,4 A. Damit konnte deutlich gezeigt werden, dass der Stromfluss durch Schalleintrag erhöht wird, was sich durch den Einfluss des Schalls auf die Diffusionsgrenzschicht 311 erklären lässt.

[0069] Figur 3 zeigt eine Strom-Spannungskurve bei einem Elektropolierversuch bei Anregung akustischer Oberflächenwellen 6 über einen außen an das Reaktionsgefäß 8 angebrachten Interdigitalwandler 4. Die dargestellte Stromspannungs-Kennlinie über die Dauer eines kompletten Elektropolierversuchs zeigt ebenfalls nochmal, dass durch Anregung von akustischen Oberflächenwellen 6 die Stromaufnahme erhöht werden kann.

[0070] Die einzelnen wesentlichen Schritte des in der Figur 3 dargestellten Versuchs wurden mit den Nummern 1 bis 9 beschriftet und werden im Folgenden erläutert:

1/2: Zunächst erfolgt eine schrittweise Spannungserhöhung bis zu dem Zeitpunkt, an welchem die Stromstärke bei Spannungserhöhung relativ konstant bleibt und ein gleichmäßiger Materialabtrag

vom Kupfer stattfindet sowie sich eine gelb-grüne Diffusionsgrenzschicht über dem Cu ausbildet.

3: Bei einer Spannung von 2,2 V überzieht eine zähe gelb-grüne Grenzschicht nahezu das komplette Cu. Der Stromwert pegelt sich nach kurzem Anstieg bei Erhöhung der Spannung auf 2,2 V auf einem konstanten Wert von 0,82 A ein. Nachdem I bei 0,82 A bleibt, wird der Interdigitalwandler 4 auf dem Boden des Becherglases erstmalig eingeschaltet.

4: Während des Wandlerbetriebs steigt die Stromstärke von 0,82 A auf 1,90 A an. Nach Inbetriebnahme des Wandlers 4 ist auch makroskopisch eine sichtbare starke Reaktion im Becherglas zu erkennen, so steigen zum Beispiel vermehrt kleine Luftbläschen vom Cu auf. Bei 1,90 A wird der Wandler 4 ausgeschaltet, I steigt aber zunächst noch weiter auf 2,2 A an und beginnt erst verzögert wieder zu sinken, d.h. auch nach dem Ausschalten des Wandlers 4 hält die verstärkte Reaktion noch an. Dabei kehrt I aber nicht mehr auf den Wert von 0,82 A zurück, bei welchem die Stromstärke vor dem erstmaligen Wandlerbetrieb lag, sondern pegelt sich bei rund 1,6 A ein.

5: Nachdem I bei etwa 1,6 A bleibt und nicht weiter sinkt, wird der Interdigitalwandler 4 ein weiteres Mal eingeschaltet, worauf der Strom auf 1,96 A ansteigt.

6: Nach Ausschalten des Wandlers 4 zeigt sich wiederum, dass die Reaktion auch im Nachhinein noch verstärkt anhält und der Strom auf über 2 A ansteigt und erst verzögert wieder zu sinken beginnt.

7: Nachdem I auf etwa 1,9 A abgefallen ist, wird der Wandler 4 ein drittes Mal eingeschaltet, worauf I bis auf 2,35 A ansteigt.

8: Bei 2,35 A wurde der Wandler 4 wieder ausgeschaltet und auch in diesem Fall hielt die verstärkte Reaktion noch nach Abschalten des Wandlers 4 an und I steigt bis auf 2,45 A an. Danach beginnt I stark zu sinken, da das Cu fast vollständig abgetragen ist.

9: Ein weiterer Versuch, den Wandler 4 bei 0,55 A nochmal einzuschalten bleibt ohne Wirkung, da das Cu nun komplett abgetragen ist.

[0071] Figur 4 beschreibt eine Ausführungsform der erfindungsgemäßen Anordnung. Eine weitere Alternative stellt die Anregung von Oberflächenwellen 6 direkt auf der ersten Elektrodenfläche 11 dar, wie sie in Figur 4 schematisch dargestellt ist. Hier erfolgt die Erzeugung der Oberflächenwellen 6 in einem Bereich der Elektrode 11, welche nicht in Kontakt mit dem Fluid (hier in Form eines Elektrolyten 31) steht. Denkbar ist jedoch auch, dass der zur Erzeugung der Oberflächenwellen 6 einge-

setzte Interdigitalwandler 4 an anderer Stelle auf der Elektrode 11 angeordnet ist.

[0072] Die Elektrode 11, auf welcher die Oberflächenwellen 6 laufen, hängt dabei frei und z.B. nur über eine Klemmverbindung am Reaktionsgefäß 8 befestigt im Elektrolyten 31. Sie wird beispielsweise nicht auf dem Boden des Reaktionsgefäßes 8 befestigt. In dem Bereich, in welchem die Anode (erste Elektrode 11) in die Elektrolytflüssigkeit (Elektrolyt 31) eintaucht, erfolgt die Modenkonzersion (wie sie bereits in Figur 1 beschrieben wurde) der akustischen Oberflächenwellen 6 und damit eine Auskopplung eines Teils der Schallenergie (in Form einer Volumenschallwelle 7) in das umgebende Medium (Elektrolyten 31) und damit auch in eine eventuell vorhandene Diffusionsschicht (hier aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt). Dadurch wird die chemische Reaktion an der Oberfläche der ersten Elektrode 11 beschleunigt und der Stromfluss erhöht, was durch erste Messungen auch bereits experimentell bestätigt wird (siehe Figur 5).

[0073] Dabei ist zu beachten, dass nach dem Auskoppeln der Oberflächenschallwelle 6 in den Elektrolyten 31 auch ein erneutes Einkoppeln der Volumenschallwelle 7 in die zweite Elektrode 12 erfolgen kann, wobei erneut eine Oberflächenwelle innerhalb der zweiten Elektrode 12 angeregt wird. Der in diesem Ausführungsbeispiel mit A gekennzeichnete Bereich beschreibt den Bereich in welchem verstärkt chemische Reaktionen an der Oberfläche der ersten bzw. zweiten Elektrode 11, 12 ablaufen, welche durch die Auskopplung bzw. Einkopplung der Oberflächenwellen 6 bedingt ist.

[0074] Figur 5 zeigt eine Abwandlung der Anordnung der Fig. 4. Hiernach ist eine zusätzliche (z.B. metallische) Platte 100 vorgesehen, die zumindest näherungsweise parallel zum oberen Abschnitt der ersten Elektrode 11 verläuft. Die Platte 100 weist z.B. eine mit der ersten Elektrode 11 vergleichbare oder identische Dicke auf.

[0075] Die Platte 100 bildet zusammen mit der ersten Elektrode 11 einen akustischen Wellenleiter. Dieser akustische Wellenleiter führt Volumenschallwellen, die sich in einem mit Elektrolyt gefüllten Zwischenraum zwischen der ersten Elektrode 11 und der Platte 100 ausbreiten und die durch Konversion der vom Sender 4 in der ersten Elektrode 11 angeregten Oberflächenschallwellen 6 entstehen. Die Führung der Volumenschallwellen wird insbesondere dadurch erzeugt, dass sowohl an der ersten Elektrode 11 als auch an der Platte 100 eine Reflexion der Volumenschallwellen erfolgt (durchgezogene Zick-Zack-Linie). Hierdurch wird einem zu großen Energieverlust der in den Elektrolyten angeregten Volumenschallwellen vor Erreichen der zweiten Elektrode 12 entgegengewirkt.

[0076] Die Platte 100 wird insofern möglichst weit bis an die zweite Elektrode 12 herangeführt, etwa bis zur Krümmung der ersten Elektrode 11. Denkbar ist auch, dass die Platte 100 über die Krümmung der ersten Elektrode 11 hinausreicht und ebenfalls eine Krümmung parallel zur Krümmung der ersten Elektrode aufweist und

entsprechend einen Abschnitt, der sich zumindest näherungsweise parallel zu einem Boden des Reaktionsgefäßes erstreckt.

[0077] Des Weiteren kann die Platte 100 zumindest näherungsweise auf dem Potential der ersten Elektrode 11 liegen.

[0078] Figur 6 zeigt eine Stromkurve eines Elektropolierversuches, die den Einfluss einer Schalleintragung durch Betätigung eines Interdigitalwandlers 4 zeigt.

[0079] In Figur 6 ist die Stromstärkeentwicklung auf einer Zeitskala dargestellt. Dabei ist bis zu einem Zeitpunkt von ca. 7 Minuten ein stetiges Wachstum der Stromstärke zu beobachten. Bei einem Einschalten B des Interdigitalwandlers 4 erfolgt ein sprunghafter Anstieg der Stromstärke, die beim Ausschalten C des Interdigitalwandlers 4, also einem Entfernen des Schalleintrags, wiederum stark absinkt und bei einem erneuten Einschalten B' wiederum sprunghaft ansteigt. Bei einem erneuten Abschalten C' sinkt die Stromstärke wieder.

[0080] Figur 6 zeigt deutlich, dass durch eine erfindungsgemäße Anordnung der Stromfluss erhöht wird, und folglich auch die chemische Reaktion an der Elektrodenoberfläche beschleunigt wird. Die erfindungsgemäße Anordnung ermöglicht also eine gezielte Beschleunigung der elektrochemischen Reaktion.

Bezugszeichenliste

[0081]

31	Elektrolyt
311	Diffusionsgrenzschicht
4	Mittel zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen
51	Zwischenschicht
6, 6', 6"	Oberflächenwellen
7	Volumenschallwelle
8	Reaktionsgefäß
81	Seitenwand des Reaktionsgefäßes
11	Erste Elektrode
12	Zweite Elektrode
100	Platte

Patentansprüche

1. Anordnung zum Durchführen einer chemischen Reaktion, mit

- einem Reaktionsgefäß (8), in dem mindestens eine erste aktive Fläche (11) in Form einer ersten Elektrode, die wenigstens abschnittsweise mit einem Fluid (31) in Form eines Elektrolyts in Kontakt ist, angeordnet ist,
- Mitteln (4) zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen (6) in der ersten Elektrode derart, dass zumindest ein Teil der in der ersten Elektrode angeregten Oberflächenwellen (6) in

Volumenschallwellen (7) innerhalb des Fluids (31) umgewandelt wird, so dass

- eine an der ersten Elektrode vorgehende elektrochemische Reaktion durch die Oberflächenwellen (6) in der ersten Elektrode und/oder durch die Volumenschallwellen (7) in dem Fluid (31) beeinflusst wird, wobei

- die Mittel (4) zum Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen (6) mindestens einen Sender umfassen, und wobei- innerhalb des Reaktionsgefäßes (8) eine zweite aktive Fläche (12) in Form einer zweiten Elektrode angeordnet ist, wobei das Fluid (31) zwischen der ersten und der zweiten Elektrode angeordnet ist, wobei zumindest ein Teil der in der ersten Elektrode angeregten Oberflächenwellen (6) in Volumenschallwellen (7) in dem zwischen den Elektroden befindlichen Fluid (31) umgewandelt wird,

dadurch gekennzeichnet, dass

die erste und die zweite Elektrode über eine Spannungsquelle miteinander verbunden sind, wobei die erste Elektrode teilweise in Kontakt mit dem Fluid (31) ist und der Sender an der Elektrode in einem Bereich angeordnet ist, der nicht in Kontakt mit dem Fluid (31) steht.

2. Anordnung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Sender ein Interdigitalwandler ist.

3. Anordnung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** an dem Reaktionsgefäß (8) ein Temperaturkontrollmittel angeordnet ist, welches geeignet ist, die Temperatur der mindestens einen aktiven Fläche (11) und/oder des Fluids (31) zu erhöhen oder zu erniedrigen.

4. Anordnung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Reaktionsgefäß (8) innerhalb eines Gehäuses angeordnet ist und an dem Gehäuse ein Druckkontrollmittel angeordnet ist, welches geeignet ist, einen Druck innerhalb des Gehäuses bzw. innerhalb des Reaktionsgefäßes (8) oberhalb oder unterhalb des Atmosphärendrucks einzustellen.

5. Verfahren zum Durchführen einer elektrochemischen Reaktion, mit den Schritten:

- Bereitstellen mindestens einer aktiven Fläche (11) in Form einer Elektrode;
- Anordnen der mindestens einer ersten aktiven Fläche (11) wenigstens abschnittsweise innerhalb eines Fluids (31) in Form eines Elektrolyts;
- Erzeugen von akustischen Oberflächenwellen (6) in der ersten Elektrode mit einem Sender derart, dass zumindest ein Teil der in der ersten

Elektrode angeregten Oberflächenwellen (6) in akustische Volumenwellen (7) innerhalb des Fluids (31) umgewandelt wird, so dass

- eine in dem Fluid (31) vorgehende elektrochemische Reaktion durch die Oberflächenwellen (6) in der ersten Elektrode und/oder die Volumenschallwellen (7) in dem Fluid (31) beeinflusst wird,

- Anordnen einer zweiten aktiven Fläche (12) in Form einer zweiten Elektrode, wobei das Fluid (31) zwischen der ersten und der zweiten Elektrode angeordnet wird, und wobei zumindest ein Teil der in der ersten Elektrode angeregten Oberflächenwellen (6) in Volumenschallwellen (7) in dem zwischen den Elektroden befindlichen Fluid (31) umgewandelt wird,

dadurch gekennzeichnet, dass

die erste und die zweite Elektrode über eine Spannungsquelle miteinander verbunden werden, wobei die erste Elektrode so angeordnet wird, dass sie teilweise in Kontakt mit dem Fluid (31) ist, und wobei der Sender an der Elektrode in einem Bereich angeordnet wird, der nicht in Kontakt mit dem Fluid (31) steht.

Claims

1. Arrangement for carrying out a chemical reaction, having

- a reaction vessel (8) in which at least one first active surface (11) in the form of a first electrode, which is in contact at least in certain portions with a fluid (31) in the form of an electrolyte, is arranged,

- means (4) for generating acoustic surface waves (6) in the first electrode, such that at least a part of the surface waves (6) incited in the first electrode is converted into volume acoustic waves (7) within the fluid (31), such that

- an electrochemical reaction taking place on the first electrode is influenced by the surface waves (6) in the first electrode and/or by the volume acoustic waves (7) in the fluid (31), wherein

- the means (4) for generating acoustic surface waves (6) comprise at least one transmitter, and wherein, within the reaction vessel (8), there is arranged a second active surface (12) in the form of a second electrode, wherein the fluid (31) is arranged between the first and the second electrode, wherein at least a part of the surface waves (6) incited in the first electrode is converted into volume acoustic waves (7) in the fluid (31) situated between the electrodes,

characterized in that

the first and the second electrode are connected to one another by means of a voltage source, wherein the first electrode is partially in contact with the fluid (31) and the transmitter is arranged on the electrode in a region which is not in contact with the fluid (31).

2. Arrangement according to Claim 1, **characterized in that** the transmitter is an interdigital converter.
3. Arrangement according to either of the preceding claims, **characterized in that**, on the reaction vessel (8), there is arranged a temperature control means which is suitable for increasing or lowering the temperature of the at least one active surface (11) and/or of the fluid (31).
4. Arrangement according to any of the preceding claims, **characterized in that** the reaction vessel (8) is arranged within a housing and, on the housing, there is arranged a pressure control means which is suitable for setting a pressure within the housing or within the reaction vessel (8) to above or below the atmospheric pressure.
5. Method for carrying out an electrochemical reaction, having the steps:
 - providing at least one active surface (11) in the form of an electrode;
 - arranging the at least one first active surface (11) at least in certain portions within a fluid (31) in the form of an electrolyte;
 - generating acoustic surface waves (6) in the first electrode by means of a transmitter such that at least a part of the surface waves (6) incited in the first electrode is converted into volume acoustic waves (7) within the fluid (31), such that
 - an electrochemical reaction taking place in the fluid (31) is influenced by the surface waves (6) in the first electrode and/or by the volume acoustic waves (7) in the fluid (31),
 - arranging a second active surface (12) in the form of a second electrode, wherein the fluid (31) is arranged between the first and the second electrode, and wherein at least a part of the surface waves (6) incited in the first electrode is converted into volume acoustic waves (7) in the fluid (31) situated between the electrodes,

characterized in that

the first and the second electrode are connected to one another by means of a voltage source, wherein the first electrode is arranged so as to be partially in contact with the fluid (31), and wherein the transmitter is arranged on the electrode in a region which is not in contact with the fluid (31).

Revendications

1. Arrangement pour réaliser une réaction chimique, comprenant
 - une cuve de réaction (8) dans laquelle est disposée au moins une première surface active (11) sous la forme d'une première électrode, laquelle est au moins dans certaines portions en contact avec un fluide (31) sous la forme d'un électrolyte,
 - des moyens (4) destinés à générer des ondes de surface (6) acoustiques dans la première électrode, de telle sorte qu'au moins une partie des ondes de surface (6) excitées dans la première électrode peuvent être converties en ondes acoustiques de volume (7) à l'intérieur du fluide (31), de sorte que
 - une réaction électrochimique qui se déroule au niveau de la première électrode est influencée par les ondes de surface (6) dans la première électrode et/ou par les ondes acoustiques de volume (7) dans le fluide (31),
 - les moyens (4) destinés à générer des ondes de surface (6) acoustiques comportant au moins un émetteur, et une deuxième surface active (12) sous la forme d'une deuxième électrode étant disposée à l'intérieur de la cuve de réaction (8), le fluide (31) étant disposé entre la première et la deuxième électrode, au moins une partie des ondes de surface (6) excitées dans la première électrode étant converties en ondes acoustiques de volume (7) dans le fluide (31) qui se trouve entre les électrodes,

caractérisé en ce que

la première et la deuxième électrode sont reliées l'une à l'autre par le biais d'une source de tension, la première électrode étant partiellement en contact avec le fluide (31) et l'émetteur au niveau de l'électrode étant disposé dans une zone qui ne se trouve pas en contact avec le fluide (31).

2. Arrangement selon la revendication 1, **caractérisé en ce que** l'émetteur est un convertisseur interdigital.
3. Arrangement selon l'une des revendications précédentes, **caractérisé en ce qu'**un moyen de contrôle de la température est disposé au niveau de la cuve de réaction (8), lequel est adapté pour augmenter ou pour diminuer la température de l'au moins une surface active (11) et/ou du fluide (31).
4. Arrangement selon l'une des revendications précédentes, **caractérisé en ce que** la cuve de réaction (8) est disposée à l'intérieur d'un boîtier et un moyen de contrôle de la pression est disposé au niveau du

boîtier, lequel est adapté pour régler une pression à l'intérieur du boîtier ou à l'intérieur de la cuve de réaction (8) au-dessus ou au-dessous de la pression atmosphérique.

5

5. Procédé pour réaliser une réaction électrochimique, comprenant les étapes suivantes :

- fourniture d'au moins une surface active (11) sous la forme d'une électrode ; 10
- disposition de l'au moins une première surface active (11) au moins dans certaines portions à l'intérieur d'un fluide (31) sous la forme d'un électrolyte ;
- génération d'ondes de surface (6) acoustiques dans la première électrode avec un émetteur, de telle sorte qu'au moins une partie des ondes de surface (6) excitées dans la première électrode sont converties en ondes acoustiques de volume (7) à l'intérieur du fluide (31), de sorte que 20
- une réaction électrochimique qui se déroule dans le fluide (31) est influencée par les ondes de surface (6) dans la première électrode et/ou par les ondes acoustiques de volume (7) dans le fluide (31), 25
- disposition d'une deuxième surface active (12) sous la forme d'une deuxième électrode, le fluide (31) étant disposé entre la première et la deuxième électrode, et au moins une partie des ondes de surface (6) excitées dans la première électrode étant converties en ondes acoustiques de volume (7) dans le fluide (31) qui se trouve entre les électrodes, 30

35

caractérisé en ce que

la première et la deuxième électrode sont reliées l'une à l'autre par le biais d'une source de tension, la première électrode étant disposée de telle sorte qu'elle se trouve partiellement en contact avec le fluide (31) et l'émetteur au niveau de l'électrode étant disposé dans une zone qui ne se trouve pas en contact avec le fluide (31) . 40

45

50

55

FIG 1

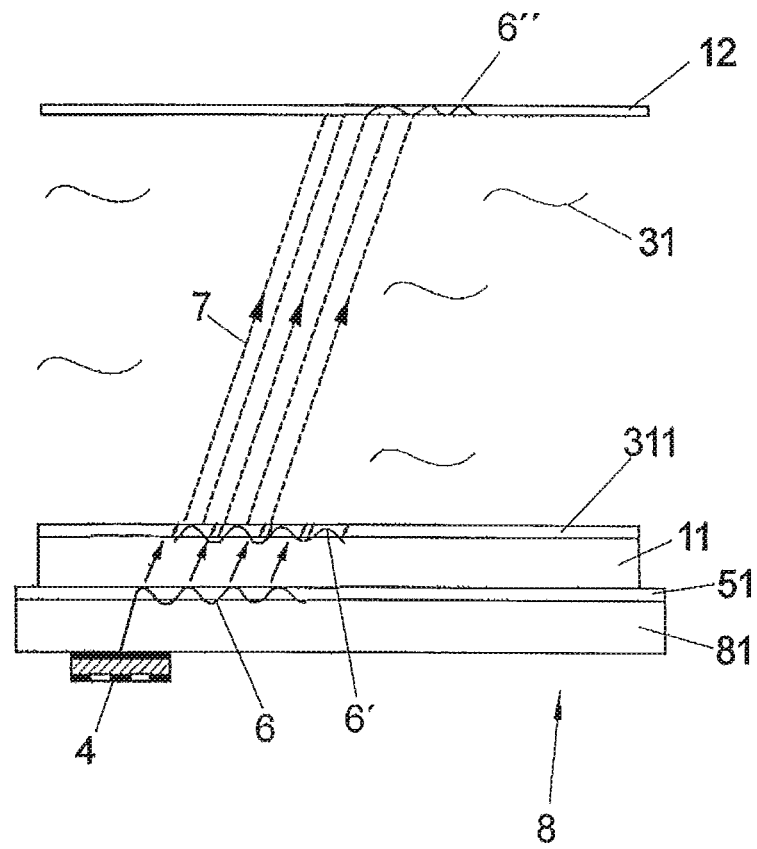


FIG 2

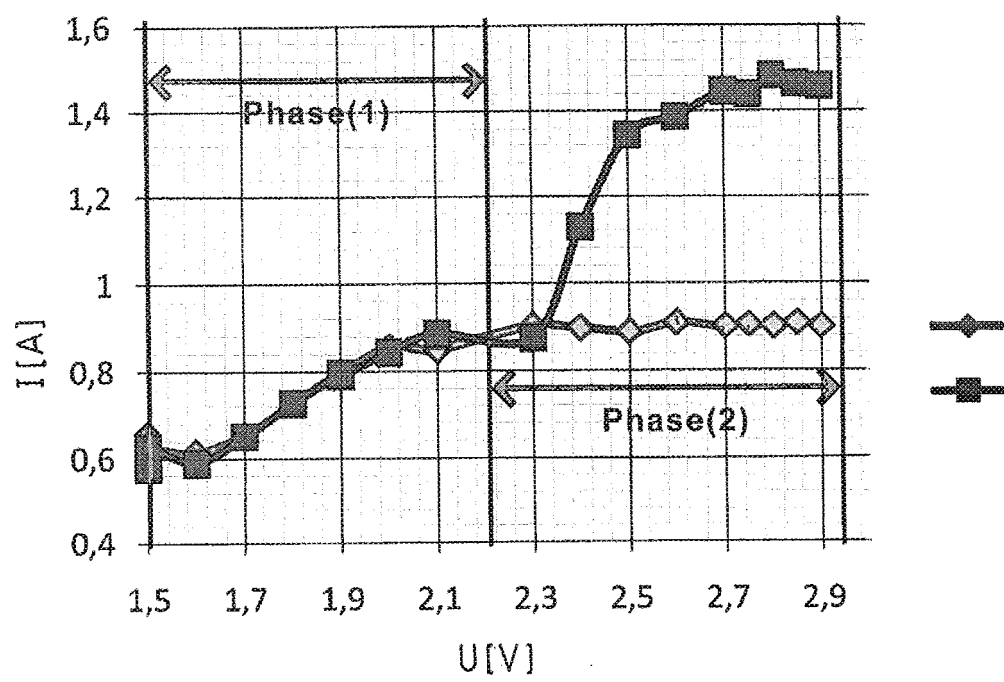


FIG 3

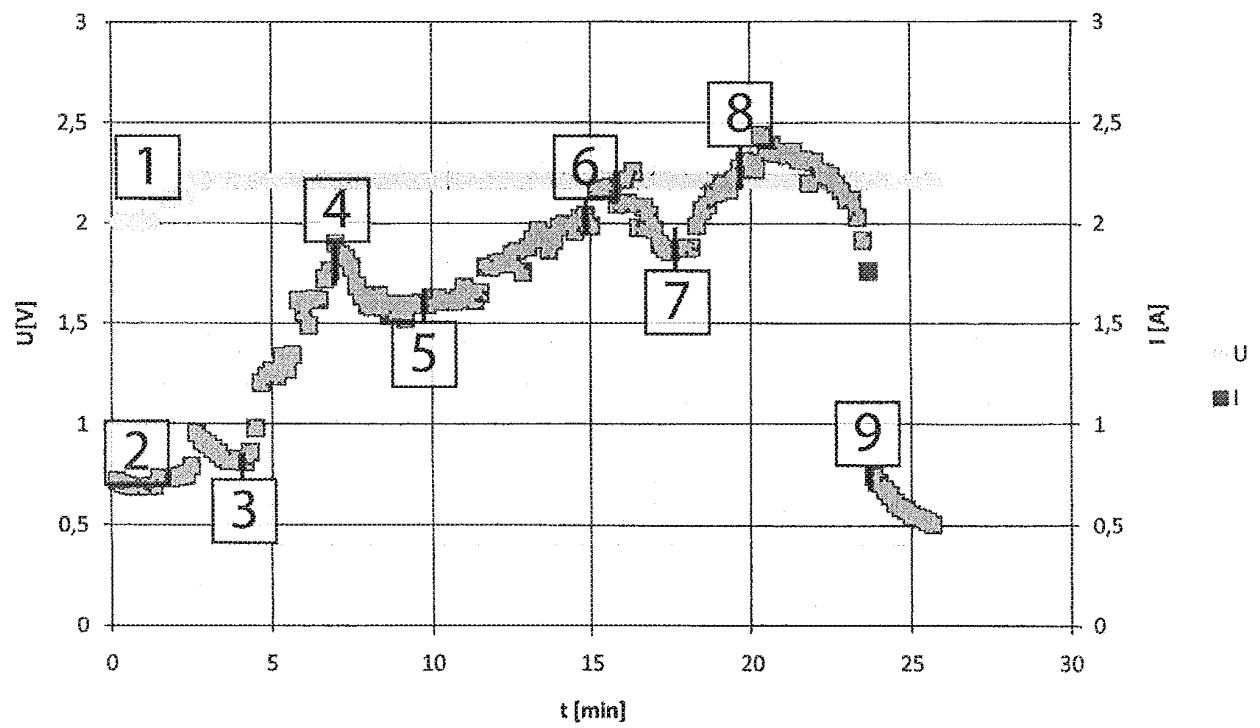


FIG 4

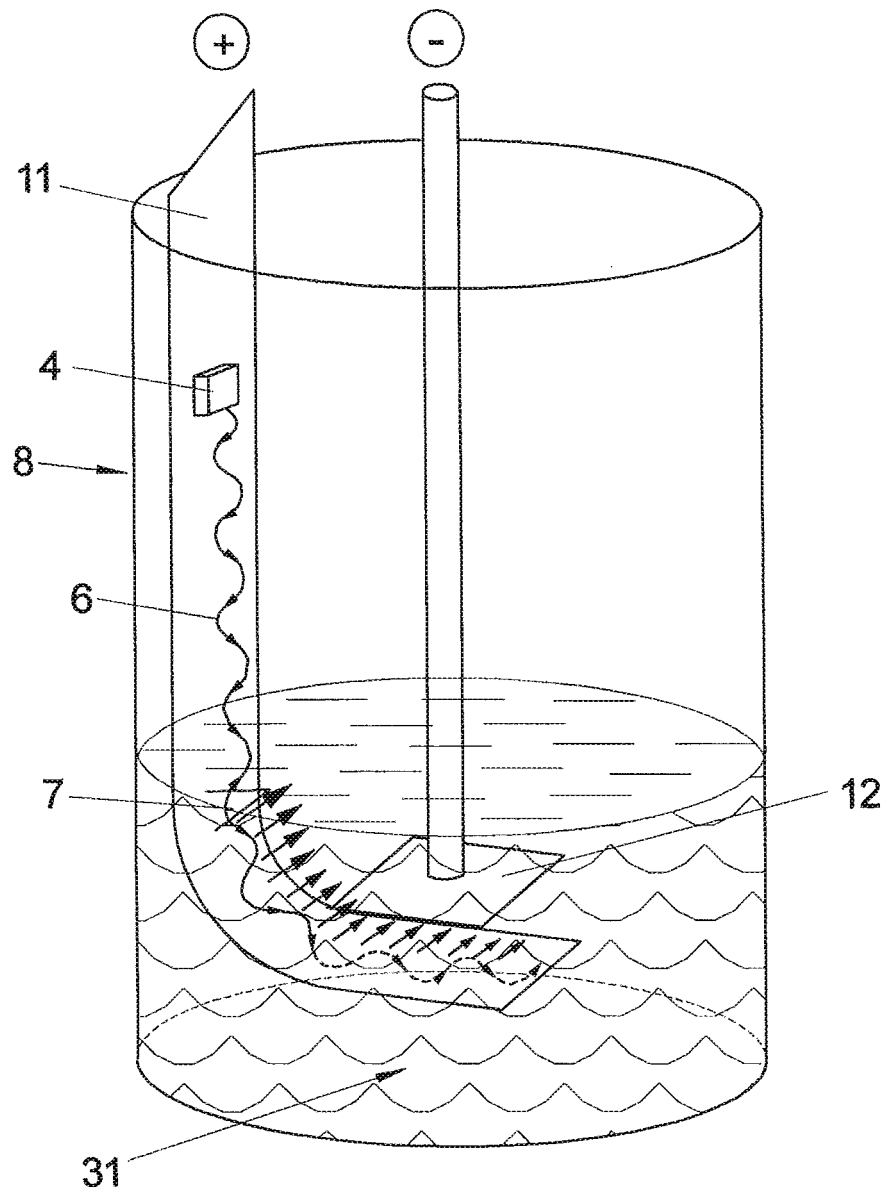


FIG 5

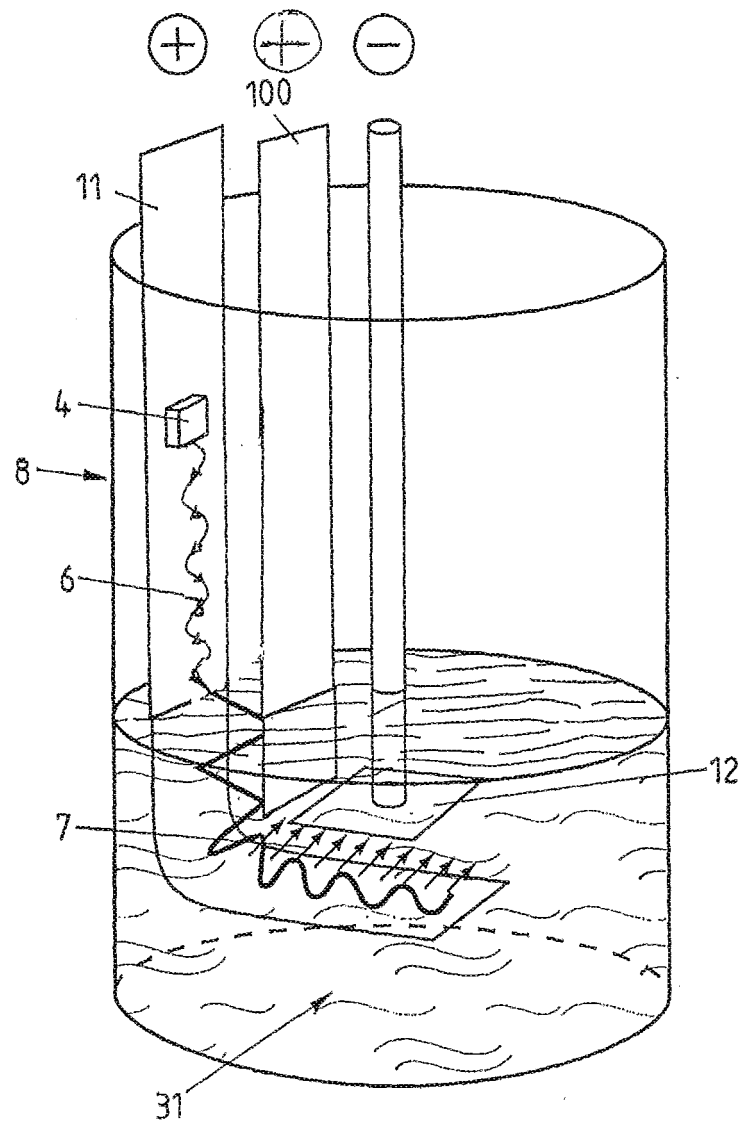
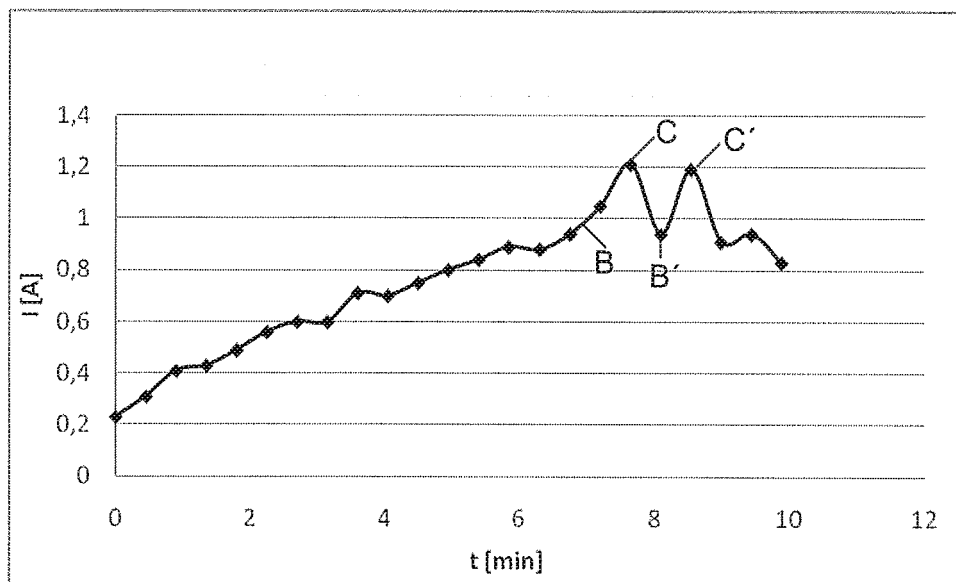


FIG 6



IN DER BESCHREIBUNG AUFGEFÜHRTE DOKUMENTE

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde ausschließlich zur Information des Lesers aufgenommen und ist nicht Bestandteil des europäischen Patentdokumentes. Sie wurde mit größter Sorgfalt zusammengestellt; das EPA übernimmt jedoch keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

In der Beschreibung aufgeführte Patentdokumente

- EP 0890658 A2 [0005]
- US 6368482 B1 [0005]
- US 2005227488 A1 [0005]
- US 2004022957 A1 [0005]
- US 2003064586 A1 [0005]
- RU 2353713 C1 [0005]
- DE 102007043563 A1 [0006]
- US 20040168706 A1 [0006]

In der Beschreibung aufgeführte Nicht-Patentliteratur

- **V.M. SCHMIDT.** Elektrochemische Verfahrenstechnik. Grundlagen, Reaktionstechnik. WILEY-VHC Verlag, 2004 [0002]
- **C. CZESLIK ; H. SEEMANN ; R. WINTER.** Basiswissen physikalische Chemie. Vieweg+Teubner Verlag, 2010 [0003]
- Megasonic agitation for enhanced electrodeposition of copper. **JENS GEORG KAUFMANN et al.** MICROSYSTEM TECHNOLOGIES; MICRO AND NANOSYSTEMS INFORMATION STORAGE AND PROCESSING SYSTEMS. SPRINGER, 02. Juni 2009, vol. 15, 1245-1254 [0005]
- **C.E. BANKS ; R.G. COMPTON.** Ultrasonically Enhanced Voltammetric Analysis and Applications: An Overview. *Electroanalysis*, 2003, vol. 15 (5- 6), 329-346 [0011]
- **I. GAVRILA.** The influence of ultrasound on the capacity of lead accumulators. *Ultrasonics*, 1978, vol. 16 (4), 156-158 [0014]
- **I. GAVRILA.** Prolongation of accumulator life using ultrasound. *Ultrasonics*, 1980, vol. 18 (5), 210-212 [0014]
- **G. LINDNER.** Sensors and actuators based on surface acoustic waves propagating along solidliquid interfaces. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2008, vol. 41 (123002), 13 [0018]