

# Nanopartikelsynthese in Sprayflammen

## *SpraySyn*: Messung, Simulation, Prozesse

---

### Programmausschuss

#### Koordinator:

- Prof. Dr. Christof Schulz  
(IVG, Institut für Verbrennung und Gasdynamik – Reaktive Fluide, IVG, und CENIDE, Center for Nanointegration Universität Duisburg-Essen)

#### Weitere Mitglieder:

- Prof. Dr.-Ing. Lutz Mädler  
(Verfahrenstechnik, Institut für Werkstofftechnik, Universität Bremen)
- Prof. Dr.-Ing. Andreas Kempf  
(Institut für Verbrennung und Gasdynamik – Fluidodynamik, IVG, und CENIDE, Center for Nanointegration Universität Duisburg-Essen)

## 1 Zusammenfassung

Die Sprayflammsynthese bietet einen vielversprechenden Ansatz zur Herstellung funktionaler Nanomaterialien. Bereits heute ist durch vielfältige Arbeiten im Labormaßstab das Potenzial des Verfahrens zur Herstellung technologisch hoch relevanter Materialien nachgewiesen. Im Vergleich zu existierenden großtechnischen Gasphasenprozessen bietet die Sprayflammsynthese den Zugang zu einer Fülle an Materialien, die sich nicht mit anderen Prozessen herstellen lassen. Die tatsächliche industrielle Nutzung scheitert bisher aber an der Notwendigkeit des Einsatzes teurer Ausgangsstoffe und einem unzureichenden Prozessverständnis. Diese Situation soll im Rahmen des SPP1980 durch einen interdisziplinären Ansatz überwunden werden, der die Grundlagen für die praktische Nutzung und (weitere) industrielle Verbreitung der Sprayflammsynthese schafft. Die Chancen hierfür sind hervorragend, da sich – bisher isoliert in verschiedenen Fachdisziplinen – in den letzten Jahren ein experimentelles, theoretisches und simulationstechnisches Instrumentarium entwickelt hat, mit dem eng verwandte Teilprozesse erfolgreich untersucht und beschrieben werden können. Ziel des Schwerpunktprogrammes ist, diese – in sich bereits komplexen – Ansätze für die Untersuchung und theoretische Beschreibung von Sprayflammsyntheseprozessen zu ertüchtigen und in einem interdisziplinären Netzwerk zusammenzuführen. Somit lassen sich Teilprozesse analysieren und die Kenntnisse in einem Gesamtmodell integrieren, so dass erstmals die Chance zu einem fundamentalen Prozessdesign eröffnet wird. Dadurch sollen teure Ausgangsmaterialien substituiert und in den Industriemaßstab skalierbare Verfahren entwickelt werden, die die gezielte Herstellung von Materialien mit einem weiten Eigenschaftsspektrum ermöglichen.

Dieser Ansatz fußt auf der Entwicklung und Anwendung von spezifischen In-situ-Analytikverfahren [3], der Erstellung von chemischen Mechanismen durch grundlegende kinetische Experimente und theoretische Berechnungen und einer umfassenden, an das Problem angepassten Simulation der Prozesskette Prekursorlösung – Spray – Flamme – Partikel. Eine Schlüsselstellung nimmt die Entwicklung und Nutzung eines Standardexperiments ein, das international als Referenzexperiment mit umfangreichem Validierungsdatensatz etabliert werden soll und langfristig als Ankerpunkt der Erforschung und Entwicklung der Partikelsynthese in Sprayflammen dienen wird.

Die Betrachtung nachgeschalteter Vorgänge zur Morphologievariation des primär gebildeten Produktes sowie die Untersuchung von isolierten Einzelaspekten sind nicht Teil dieses SPP.

Das Schwerpunktprogramm gliedert sich in die Themenblöcke

- **In-situ-Messtechnik**
- **Theorie und Simulation**
- **Prozesse**

Als verbindendes Element dienen eine gemeinsame **Modellkonfiguration** und die Fokussierung auf festgelegte **Materialsysteme**. Alle Teilprojekte werden unmittelbar von einer (in den meisten Fällen aber von beiden) dieser Festlegungen beeinflusst und somit die Kohärenz des SPP1980 gewährleistet.

## 2 Hintergrund

**Die Synthese von spezifischen Nanomaterialien durch Zerstäubung und Verbrennung von Lösungen geeigneter Prekursor-Mischungen in Form von Sprayflammen hat ein hohes Potenzial.** Sie ermöglicht, in einem kontinuierlichen Prozess und auf Basis von kostengünstigen Ausgangssubstanzen, komplexe und hochreine Nanomaterialien in der Gasphase herzustellen. Durch das Sprayverfahren kann dabei eine große Vielfalt an chemischen Elementen genutzt und kombiniert werden. Dies unterscheidet den Sprayflammenprozess wesentlich von der industriell etablierten Partikelherstellung in Gasflammen. Bei geeigneter Prozessführung gelingt die Herstellung von Materialien mit definierter Zusammensetzung, Partikelgröße und Morphologie – auch jenseits der thermodynamischen Stabilitätsgrenzen und damit außerhalb des erreichbaren Materialspektrums von Syntheseverfahren in der Flüssigphase. Ebenfalls lassen sich in Sprayflammen nanoskopische Mischungen und Komposite unterschiedlicher Materialsysteme erzielen. Solche Materialien sind von großem praktischem und kommerziellem Interesse in einem weiten Anwendungsfeld, das z.B. technische Katalyse, Batteriespeicher und Photovoltaik einschließt. In über 600 Veröffentlichungen der letzten Jahre wurde von etwa 30 akademischen Arbeitsgruppen weltweit die Sprayflammensynthese von ca. 300 verschiedenen Materialien beschrieben und somit **die prinzipielle Machbarkeit im Experiment nachgewiesen**. Darüber hinaus zeigen die Untersuchungen ein großes Potenzial für bisher nicht erschlossene Materialien.

Dass die **Produktion von Nanomaterialien aus flüssigen Vorläufermaterialien in Gasphasensyntheseprozessen im industriellen Maßstab** grundsätzlich gelingt, zeigen etablierte Prozesse zur Herstellung von SiO<sub>2</sub> (fumed silica), TiO<sub>2</sub> und technischem Ruß (carbon black). Auch erste Kleinanlagen für die Sprayflammensynthese sind kommerziell verfügbar. Eine Übertragung in den technischen Maßstab und eine damit verbundene Anwendung von hochattraktiven Materialien in großflächig eingesetzten Produkten hat bisher aber nur ansatzweise stattgefunden [4]. Dadurch können vielfältige Anwendungsfelder bisher nicht untersucht und weiter entwickelt werden, weil die erforderlichen Materialien für die Weiterverarbeitung und Produktentwicklung nicht in ausreichender Menge zur Verfügung stehen. Die großtechnische Nutzung scheitert bisher insbesondere an dem Hindernis, dass für die Sprayflammensynthese mit dem bisherigen Kenntnisstand vielfach teure Spezialchemikalien (metallorganische Ausgangsstoffe) und teure Lösungsmittel (Xylol, etc.) eingesetzt werden müssen. Zudem sind zentrale Prozesse wie der Übergang der Substanzen aus dem Tropfen in die Gasphase, deren Reaktionen und die Interaktion der primären Zerfallsprodukte mit der Flamme bisher nicht genügend verstanden. Damit fehlen Ansätze, die es erlauben, die Prozesse kostengünstig zu steuern, beispielsweise unter Einsatz von Salzlösungen (Nitrate, Carbonate) mit üblichen Lösungsmitteln (einfache aliphatische Kohlenwasserstoffe, Alkohole oder sogar Wasser). **Diese Hürde zu überwinden, erfordert eine deutliche Erweiterung des Detailverständnisses der Prozesskette** von Lösungsstabilisierung – Spraybildung und -verdampfung<sup>1</sup> – Interaktion der Prekursoren und Metallatome mit der Flammenchemie – und Partikelbildung und -wachstum im komplexen turbulenten reaktiven Strömungsfeld. Bisher auftretende Schwierigkeiten sind beispielsweise die vorzeitige Hydrolyse von noch nicht verdampften Ausgangsstoffen, die Bildung großer Feststoffpartikel während der Tropfenverdampfung, die Verunreinigung des Produktes durch Rußbildung infolge einer lokal

---

<sup>1</sup> Im Text wird durchgehend der Begriff Verdampfung benutzt, auch wenn es sich streng genommen um Verdunstung handelt. Dies geschieht, da das Thema eine große Anzahl von Fachkreisen anspricht, die vielfach die Begriffe nicht explizit unterscheiden.

unvollständigen Verbrennung oder die Ausbildung einer breiten Eigenschaftsverteilung durch großräumige Wirbel. Viele dieser Probleme lassen sich auf unerwünschte Inhomogenitäten, Rückvermischung oder nicht aufeinander abgestimmte Kinetiken zurückführen, die bisher noch nicht unter Kontrolle sind.

Die Entwicklung der derzeit existierenden Verfahren zur Sprayflammsynthese erfolgte **bisher weitgehend phänomenologisch mit dem Fokus auf den Eigenschaften der erzeugten Materialien**. Der Ansatz beruhte in der Regel auf einer Ex-situ-Charakterisierung der hergestellten Materialien und einer weitgehend empirischen Variation von Ausgangssubstanzen, Reaktionsbedingungen und Brennergeometrien. Diese Entwicklung war in der Vergangenheit weitestgehend abgekoppelt von den Fortschritten in verwandten Themenfeldern, insbesondere der klassischen Verbrennungsforschung, der Sprayerzeugung, der Interaktion von Prekursoren und Brennstoffen bzgl. Lösungsstabilisierung und -verdampfung sowie der Beschreibung von Mehrphasenströmungen. **Daher ist** – trotz der demonstrierten Erfolge – **offensichtlich, dass durch die synergetische Nutzung der teilweise jahrzehntelangen Vorerfahrungen** im Bereich des Brennerdesigns, der Nanopartikelsynthese in vorgemischten Gasphasensystemen, der neuen In-situ-Messverfahren und Simulationsansätze für reaktive Strömungen, dem verbesserten mechanistischen Verständnis von Verbrennungsprozessen sowie der neuen Möglichkeiten zur theoretischen Beschreibung der Eigenschaften der Lösungen von Prekursoren in Lösungsmitteln **erstmalig die realistische Chance besteht, die oben genannten Hürden zu überwinden**.

## 2.1 Strukturierung der Fragestellung

Die Synthese von Nanopartikeln in Sprayflammen durchläuft eine Sequenz von aufeinanderfolgenden Prozessen, die in starkem Maß von Interaktionen auf der molekularen Ebene sowie von ultraschnellen physikalischen und chemischen Prozessen bestimmt werden. Im Sinne dieser Sequenz (Abbildung 1)

lässt sich der Prozess in Elementarprozesse im Spray (weitgehend dominiert durch molekulare Interaktion und Flüssigkeitseigenschaften), in der Flamme (dominiert durch ultraschnelle Radikalreaktionen und deren Interaktion mit Strömungsprozessen) und der Partikel

(Oberflächenwachstum, Koaleszenz und Aggregation) unterteilen. Tatsächlich laufen diese Prozesse in einer Sprayflamme aber nicht räumlich und zeitlich isoliert ab. Aufgrund der unterschiedlichen Zeitskalen von Spraybildung und -verdampfung (langsam), Prekursorzerfall (schnell),

Flammenchemie (ultraschnell) und Partikelbildung (mit temperaturabhängiger Konkurrenz von Koaleszenz und Aggregation) überlappen die jeweiligen Prozesse. Dadurch weist die Sprayflammsynthese einen erheblich höheren Komplexitätsgrad auf als die Flammensynthese von Nanomaterialien auf Basis homogen vorgemischter Gase. Zudem sind Prekursor- und Flammenchemie über katalytische Prozesse stark gekoppelt. Diese Effekte werden durch Turbulenz und rezirkulierende Strömungen sowie örtliche Temperaturvariationen weiter kompliziert, so dass nur eine gekoppelte Betrachtung der Elementarprozesse – wie sie im SPP1980 SpraySyn erstmalig möglich sein wird – zum Erfolg führen kann.

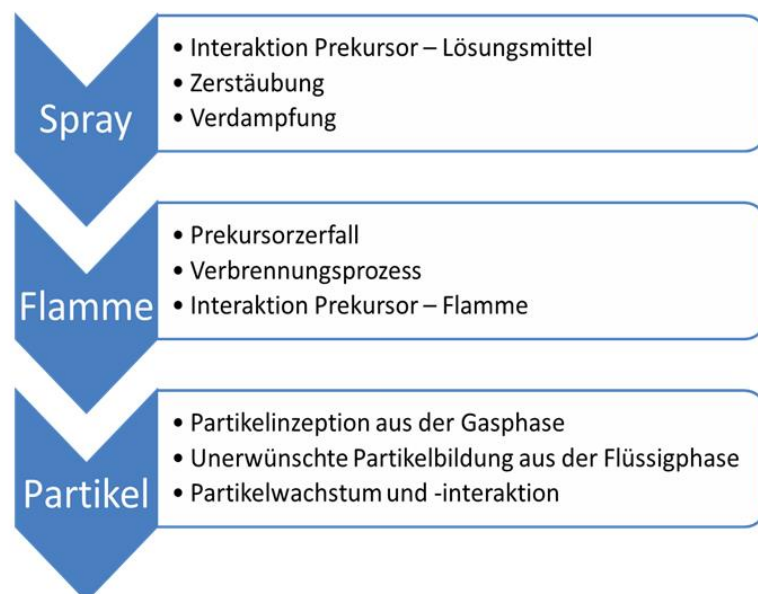


Abbildung 1: Sequenz relevanter Vorgänge in der Sprayflammsynthese

Zur erfolgreichen Beschreibung des Gesamtprozesses ist daher eine **lückenlose, enge Zusammenarbeit verschiedener Fachdisziplinen** erforderlich, die jeweils unterschiedliche, sich gegenseitig stützende Themenfelder innerhalb des Schwerpunktprogramms verfolgen. Viele dieser Themen werden hier **erstmals im Zusammenhang der Partikelsynthese betrachtet** und damit durch dieses zentrale Thema verknüpft. Die folgenden Abschnitte beschreiben den Stand der Technik in diesen vier Themenfeldern, die jeweils von den vier Initiatoren des Schwerpunktprogramms repräsentiert werden. Die eigenen Forschungsbeiträge der Initiatoren nehmen darin einen wichtigen Stellenwert ein.

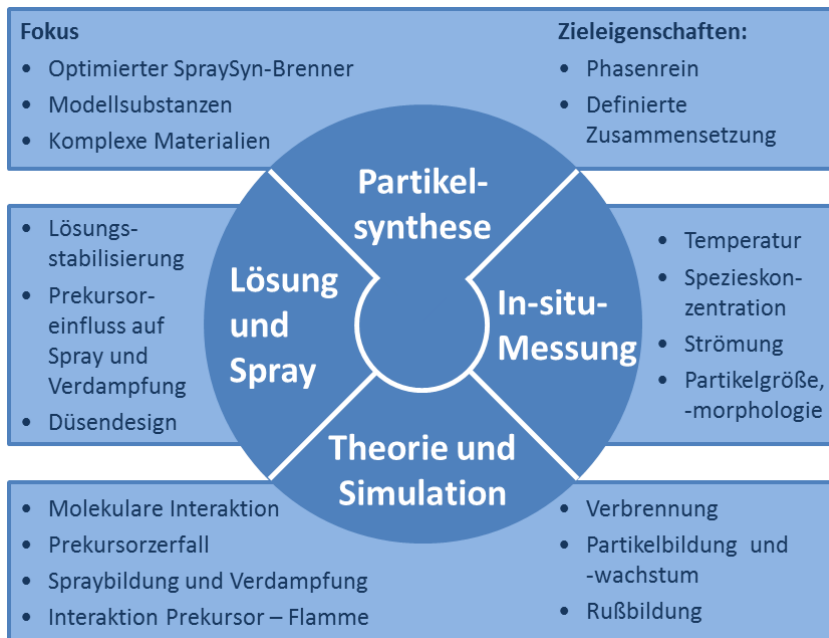


Abbildung 2: Interaktion der vier Fachdisziplinen, die das SPP1980 tragen und die hier relevanten Fragestellungen. Teilprojekte des SPP1980 kombinieren Aspekte der unterschiedlichen Felder zur Bearbeitung ausgewählter Themen in kooperativer interdisziplinärer Zusammenarbeit.

### 3 Bedeutung des Forschungsprogramms

Die Synthese von spezifischen Nanomaterialien durch Zerstäubung und Verbrennung von Lösungen geeigneter Prekursor-Mischungen in Form von Sprayflammen hat ein hohes Potenzial. In zahlreichen Veröffentlichungen wurde die prinzipielle Machbarkeit nachgewiesen. Eine Übertragung in den technischen Maßstab hat bisher aber nur ansatzweise stattgefunden. Die Nutzung scheitert bisher an dem Hindernis, dass für die Sprayflammensynthese mit dem bisherigen Kenntnisstand vielfach teure Spezialchemikalien eingesetzt werden müssen. Zudem sind zentrale Prozesse nicht genügend verstanden. Damit fehlen Ansätze, die es erlauben, die Prozesse kostengünstig zu steuern. Diese Hürde zu überwinden, erfordert eine deutliche Erweiterung des Detailverständnisses der Prozesskette von Lösungsstabilisierung über Spraybildung und -verdampfung sowie Interaktion der Prekursoren und Metallatome mit der Flammenchemie bis hin zur Partikelbildung und -wachstum im komplexen turbulenten reaktiven Strömungsfeld.

Die Entwicklung der derzeit existierenden Verfahren zur Sprayflammensynthese erfolgte bisher weitgehend phänomenologisch mit dem Fokus auf den Eigenschaften der erzeugten Materialien. **Daher ist – trotz der demonstrierten Erfolge – offensichtlich, dass durch die synergetische Nutzung der teilweise jahrzehntelangen Vorerfahrungen** im Bereich des Brennerdesigns, der Nanopartikelsynthese in vorgemischten Gasphasensystemen, der neuen In-situ-Messverfahren und Simulationsansätze für reaktive Strömungen, dem verbesserten mechanistischen Verständnis von Verbrennungsprozessen sowie der neuen Möglichkeiten zur theoretischen Beschreibung der Eigenschaften der Lösungen von Prekursoren in Lösungsmitteln **erstmals die realistische Chance besteht, die oben genannten Hürden zu überwinden.**

Bisher werden die genannten Themen in weitgehend disjunkten Fachgemeinschaften erforscht. **Der Mehrwert dieses Vorhabens liegt darin, diese bisher entkoppelten, für sich aber jeweils hoch entwickelten und auf höchstem internationalen Niveau arbeitenden Fachgemeinschaften in einem**

**Themenfeld von hoher praktischer Relevanz („Emerging Field“)** zusammen zu führen. Daraus ist – neben der Entwicklung von Lösungsansätzen für die unmittelbare technologischen Fragestellung der Nanopartikelsynthese – eine erhebliche Befruchtung des grundlegenden Verständnisses komplexer Mehrphasenprozesse zu erwarten, mit Nutzen für über das Themenfeld der Nanopartikelsynthese hinausgehende Gebiete wie beispielsweise dem theoretischen Verständnis der Verbrennung von Stäuben, der Aerosol- und Partikelbildung aus Lösungen und der Prozessierung von partikelbeladenen Strömungen. Die Voraussetzungen im deutschen Forschungsumfeld sind wegen der Konzentration der Expertise in den erforderlichen Feldern außerordentlich gut, so dass durch die in diesem Schwerpunktprogramm koordinierte Vernetzung eine internationale Führungsrolle erreicht werden kann. Das fach- und ortsübergreifende Netzwerk des SPP1980 ermöglicht zudem die Ausbildung von wissenschaftlichem Nachwuchs in einem inspirierenden Umfeld, dessen fachliche Kooperation Modellcharakter hat

Das Schwerpunktprogramm profitiert – parallel zur Entwicklung der Nanomaterialsynthese und -charakterisierung – von den folgenden aktuellen Entwicklungen:

- Die **messtechnischen Möglichkeiten** zur Untersuchung reaktiver Strömungsprozesse wurden in den letzten Jahren revolutioniert. Dies schließt (Laser-)optische Messung der Gasphasenprozesse, Beobachtung von Partikelbildungs- und -wachstumsprozessen, Röntgenstreuung und Experimente mit Synchrotronstrahlung bis hin zu Probenahmeverfahren wie zum Beispiel mit Molekularstrahlverfahren ein. Diese detaillierten Messdaten liefern eine hervorragende Grundlage zur Entwicklung und Validierung von Modell- und Simulationsansätzen.
- **Simulationsverfahren** haben aufgrund der mittlerweile verfügbaren Rechnerleistung, sich entwickelnder Turbulenz- und Verbrennungsmodelle, der zugenommenen Information über die Kinetik von Elementarreaktionen und die Interaktion auf molekularer sowie Partikel-Partikel-Ebene in den letzten Jahren dramatische Fortschritte bei der Beschreibung reaktiver Mehrphasenströmungen gemacht.
- Das **theoretische Verständnis** intra- und intermolekularer Prozesse entwickelt sich rapide weiter. Mit den Verfahren der Theoretischen Chemie zur Beschreibung der Reaktionen metallorganischer Substanzen gelingt die Unterstützung der Entwicklung von Reaktionsmechanismen. Die Beschreibung der molekularen Interaktion von Salzen und komplexen Molekülen in Lösungsmitteln ermöglicht die Vorhersage von Lösungs-, Zerstäubungs- und Verdampfungseigenschaften der Prekursor-Lösungen. Molekulardynamik bietet darüber hinaus Zugang zur Beschreibung der Interaktion von Partikeln mit der umgebenden Gasphase und mit anderen Partikeln zur Beschreibung von Wachstums- und Sinterprozessen.

In Analogie zu den in der Verbrennungsforschung seit Jahrzehnten höchst erfolgreich eingesetzten Standardflammen, mit denen es gelungen ist, durch die vereinte Expertise zahlreicher Arbeitsgruppen hochkomplexe Prozesse aufzuklären und mit hoher Genauigkeit zu simulieren, wird nun erstmalig ein **Standardprozess für die Sprayflammsynthese** definiert und genutzt. Dieser Prozess weist sowohl eine für die Simulation als auch für die In-situ-Messtechnik optimale Geometrie auf, minimiert die Interaktion von Fluidodynamik, Wärmeübertragung und Kinetik, ist einfach zu duplizieren und reproduzierbar zu betreiben. Ein solches standardisiertes Experiment (SpraySyn-Brenner [5]) wurde von einer Arbeitsgruppe aus Messtechnikern und Simulationsexperten des SPP1980 mit dem erforderlichen Prozessverständnis entwickelt werden. Es wird als **verbindendes Element** in zahlreichen Projekten des Schwerpunktprogramms genutzt und setzt **einen weltweiten Standard** als Referenzexperiment, der einerseits die Ergebnisse dieses Schwerpunktprogramms langfristig als Validierungsdaten für die internationale Community nutzbar macht und es andererseits ermöglicht, außerhalb des SPP1980 erzeugte Messdaten im SPP zu nutzen.

Voraussetzung für den Erfolg des SPP ist sowohl die **hohe Qualität** der Beiträge sowie die **Passgenauigkeit** in das Gesamtkonzept. Dabei werden die einzelnen Anträge über ihren eigenständigen wissenschaftlichen Kern hinaus zu einem gewissen Teil Zuarbeiten für andere Projekte liefern.



Mit diesem Ansatz wird das SPP1980 das Forschungsfeld nachhaltig prägen und den derzeit in Deutschland existierenden Vorsprung der Gasphasensynthese funktionaler Nanopartikel auf Sprayflammen erweitern und im internationalen Umfeld weiter ausbauen.

### 3.1 Übergreifende Ziele:

- Umfassendes Verständnis der Sprayflammsynthese auf Basis einer physikalisch fundierten Modellierung der Subprozesse
- Schaffung von Methoden zur skalenübergreifenden Simulation zur Auslegung, Skalierung und Optimierung von Sprayflammen-Synthesenanlagen
- Design von ökonomischen und nachhaltigen Prozessen durch Substitution von Ausgangsmaterialien hin zu kostengünstigen Brennstoffen, Metallsalzen statt metallorganischen Substanzen, sowie kostengünstigen Lösungsmitteln (ggf. auch Wasser)
- Ertüchtigung der Sprayflammsynthese zur kostengünstigen Herstellung hochspezifischer nanoskaliger Materialien im industriellen Maßstab

### 3.2 Konkrete Projektziele

- Entwickeln und Etablieren einer Standardkonfiguration (SpraySyn-Brenner) unter Berücksichtigung der praktischen Relevanz, reproduzierbaren Fertigung, Vermessbarkeit und Simulierbarkeit
- Aufbau eines umfangreichen, gut dokumentierten und öffentlich zugänglichen Datensatzes für ausgewählte Betriebszustände (Benchmarking)
- Entwicklung und Bereitstellung von messtechnischen Ansätzen
- Entwicklung und Bereitstellung von Simulationsverfahren
- Aufklären zentraler Subprozesse
  - Spraybildung und Verdampfung Prekursor-beladener Tröpfchen
  - Interaktion der Prekursoren mit der Flammenchemie: Untersuchung atomarer/molekularer Intermediate und deren Einfluss auf die Reaktionsmechanismen
  - Einfluss der Tropfen und Partikelbeladung auf die turbulente Strömung
- Aufbau und Nutzung einer Datenbank, um die Ergebnisse des gesamten SPP langfristig zu dokumentieren.
- Nutzen des SpraySyn-Ansatzes zum Design von optimierten und skalierten Synthesenanlagen, die dann zur Validierung der Simulationsverfahren eingesetzt werden
- Nutzen des SpraySyn-Ansatzes für mehrstufige und kombinierte Synthese komplexer Materialien

### 3.3 Langfristige Ziele (Visionen)

- Entwicklung von Prozessdesignregeln für die industrielle Umsetzung
- Entwicklung integrierter Sprayflammenprozesse, z.B. durch Unterstützung der Sprayflammsynthese durch Plasmaprozesse
- Evaluierung der Möglichkeit einer kohlenstofffreien Sprayflammsynthese zum vollständigen Ausschluss von Karbidbildung und Kohlenstoffverunreinigungen
- Übertragung und Verallgemeinerung der im SPP1980 entwickelten Strategien der Interaktion von Theorie und Experiment auf weitere komplexe Fragestellungen der Materialsynthese (nicht begrenzt auf die Sprayflammsynthese)
- Die SpraySyn-Datenbank ist als Standard und Referenz etabliert und wirkt über die Projektlaufzeit SPP hinaus, um langfristig die Erforschung und Entwicklung der Sprayflammen-basierten Nanopartikelsynthese voranbringen

## 4 Eingrenzung der wissenschaftlichen Fragestellungen

Das Schwerpunktprogramm1980 gliedert sich in die drei folgenden Themenblöcke, deren Inhalte unten genauer aufgeschlüsselt sind:

- **Theorie und Simulation** (Molekulare Interaktion, chemische Reaktion, Partikelinteraktion, Wechselwirkungen mit der (turbulenten) Strömung)
- **In-situ-Messtechnik** (Spray, Partikel, Gasphasen-Konzentrationen und -Temperaturen, Geschwindigkeiten)
- **Prozesse** (Spray, Brenner, Gasführung)

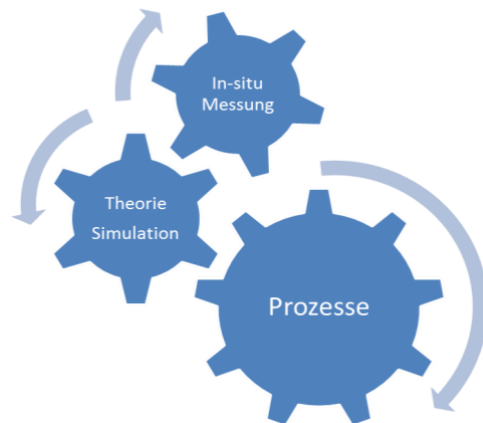


Abbildung 3: Themenblöcke des Schwerpunktprogramms SpraySyn

### 4.1 Theorie und Simulation

- Molekulare Interaktion von Precursor und Lösungsmittel: statische und dynamische Stoffgrößen, Kontinuums- und Grenzflächeneigenschaften
- Chemische Reaktion: Zerfallskinetik lösungsbasierter Precursorsysteme, Reaktionsmechanismen der Precursoren sowie mechanistische Beschreibung der Interaktion der Precursor- und der Flammenchemie, Konkurrenz zur Rußbildung
- Interaktion in turbulenten reaktiven Mehrphasenströmungen: Sprayverbrennung komplexer Lösungen, reaktive turbulente Mehrphasenströmung
- Partikeldynamik: homogene Partikelbildung, -wachstum und -interaktion

### 4.2 In-situ-Messtechnik

- Flüssigphase: Tropfengrößen, -geschwindigkeiten, -temperatur und -verdampfung, Reaktionen und Phasenumwandlung innerhalb der Tropfen
- Gasphase: Strömungsgeschwindigkeiten, Temperaturverteilung und Konzentrationsverteilung ausgewählter Spezies: zeit- und orts aufgelöst (LIF, Raman), Spezieskonzentrationen exotischer Spezies: Sichtlinien-integriert (FTIR), Prozessmesstechnik (TDLAS), Fluktuationsbewertung (Chemilumineszenz-Tomographie)
- Partikelphase: Partikelgröße, Partikel-Volumenbruch, Phasenzusammensetzung, Oberflächenschichten, Morphologie: winkelaufgelöste Lichtstreuung, Ramanstreuung, laserinduzierte Inkandeszenz, Röntgen-Kleinwinkelstreuung

### 4.3 Prozesse

- Spray: Sprayzerstäubung, Precursorzufuhr, gepulste Zuführung
- Brenner: Kompaktheit der Flamme, Unterdrücken/Erzeugen von Fluktuationen, Modifikation des Temperaturfeldes, Einfluss des Brennstoffs, Modifikation der Temperaturverteilung, kohlenstofffreie Brennstoffe
- Alternative Energiezufuhr: Plasma-Unterstützung, nicht-kohlenstoffhaltige Brennstoffe und Lösungsmittel
- Medienführung: Düsenkonzepte, Mischungskonzepte, Dosier- und Förderkonzepte

### 4.4 Nicht Teil des Arbeitsprogramms sind:

- Erzeugung von Kohlenstoffpartikeln (es sei denn, Ruß tritt als Verunreinigung in Kombination mit der Bildung von Nicht-Kohlenstoffpartikeln auf)
- Modifikation der Partikelmorphologie im Nachlauf der Sprayflammsynthese
- Betrachtung von isolierten Einzelprozessen ohne Einbindung in das Gesamtkonzept

## 5 Kohärenz der geplanten Forschungsaktivitäten

Als verbindendes Element dienen eine gemeinsame **Modellkonfiguration** und die Definition von **Materialsystemen**. Dadurch entfällt eine zeitaufwändige Startphase und eine kohärente Zusammenarbeit wird sichergestellt. Alle Teilprojekte werden unmittelbar von einer, normalerweise aber von beiden Festlegungen zur Modellkonfiguration und zum Materialsystem beeinflusst.

### 5.1 Definition einer Modellkonfiguration

Ein zentrales Element des Schwerpunktprogramms ist der Entwurf und Einsatz eines Standardbrenners, des so genannten **SpraySyn-Brenners** [5] (Abbildung 4). Eine innerhalb des SPP1980 vereinbarte Standardkonfiguration ermöglicht eine umfassende Charakterisierung der Sprayflammsynthese mit einer Vielzahl an In-situ- und Ex-situ-Messverfahren und die Implementierung und Integration von Submodellen mit dem Ziel einer validierten Gesamtsimulation. So soll ein international anerkannter Standard mit langfristiger Bedeutung geschaffen werden. Voraussetzung hierfür ist die Entwicklung eines Brenners, der ideale Voraussetzungen für Messung und Simulation bietet, reproduzierbar arbeitet, vergleichsweise kostengünstig ist und bei der Simulation geringen Aufwand für die korrekte Behandlung von Randbedingungen und Fernfeld erfordert. Zudem soll der Brenner so konstruiert sein, dass er in eine Kammer integriert werden kann, um Druck und Zusammensetzung der Atmosphäre (insbesondere Sauerstoffgehalt) gezielt variieren können.

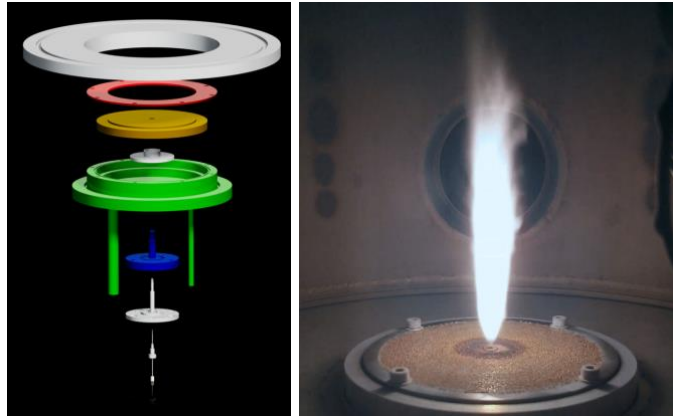


Abbildung 4: Konstruktion und Betrieb eines neuen modularen, für optische Diagnostik und Simulation optimierten Sprayflammsynthesebrenners. Das Foto zeigt eine erste Implementierung [1,2], die im Rahmen des SPP1980 weiter verfeinert werden soll und dann als Standard innerhalb des SPP1980 – aber auch in der internationalen Community – etabliert wird.

Bisherige Brenner, die aufgrund ihrer kommerziellen Verfügbarkeit bereits in mehreren Labors vorhanden sind, sind für diesen Zweck nur bedingt geeignet. Sie nutzen beispielsweise für die Stützflamme kreisförmige Schlitzöffnungen mit sehr geringer Schlitzbreite (wenige hundert Mikrometer). Daraus resultieren sehr hohe Austrittsgeschwindigkeiten, die in einer Zone abseits des eigentlichen Prozesses sehr hohen Simulationsaufwand hervorrufen. Aufgrund der geringen Spaltmaße ist das Strömungsfeld zudem im extremen Maß von der Justage abhängig. In fast allen Fällen ergibt sich dadurch eine Abweichung von der angestrebten Axialsymmetrie. Aufgrund der fehlenden Übertragbarkeit wären die Messergebnisse aus unterschiedlichen Labors nicht unmittelbar kombinierbar.

Es wird ein modulares Konzept angestrebt, bei dem die Gase durch eine kostengünstige Sinterplatte ausströmen und die Pilotflamme durch unter der Sinterplatte liegende Zuströmkammern variiert werden kann (Abbildung ). Durch die gut simulierbare Stützflamme kann der Brenner in unterschiedliche Gehäuse eingebaut werden und damit der Einfluss der Umgebung mit begrenztem Rechenaufwand erfasst werden. Ein wesentliches Ziel ist ein benutzerfreundliche Konstruktion, bei der die Teile leicht demontiert und gereinigt werden können und bei der sich kritische Bauteile selbst zentrieren um eine reproduzierbare Geometrie zu gewährleisten.

Der Brenner bietet einerseits für CFD-Simulation optimale Bedingungen (keine Zonen, die extreme Gitterauflösung erfordern, Entkopplung von der Umgebung) und ermöglicht vollen Zugang für optische Messungen (keine Versperrungen, kein Einfluss durch Fenster im Gehäuse).

### 5.2 Definition von Materialsystemen

Die betrachteten Materialien sind gezielt ausgewählt, um das Gesamtsystem mit unterschiedlichen und zunehmenden Komplexitäten untersuchen zu können.



- **Eisen-Oxide:** Hierbei handelt es sich um ein System, bei dem schon vergleichsweise viele Grundlagen bekannt sind. Aufgrund der verschiedenen Oxidationsstufen und Phasen ist eine zielgerichtete Synthese herausfordernd und das Material daher ein kritischer Testfall für die Simulation der Sprayflammsynthese.
- **Barium/Strontium-Oxide:** Diese Substanzen neigen zur Carbonat-Bildung und erfordern daher ein hohes Maß an Prozessverständnis bzgl. der Temperaturverteilung und Rückströmung von Verbrennungsabgasen.
- **Barium/Titan-Oxide:** Die Ausgangsstoffe (z.B. TTIP) sind stark hydrolyseempfindlich und erfordern damit ein hohes Maß an Prozessverständnis bzgl. der Rückströmung von in der Verbrennung gebildetem Wasserdampf.
- **Cer/Aluminium-Oxide:** Diese Materialien können bisher allenfalls über sehr teure Prekursoren in Flammen hergestellt werden. Das Ziel ist hier die Substitution durch Salze. Dies führt zu einer hohen Anforderung an die Spraybildung und Verdampfung, um eine Verunreinigung der Produkte durch große Partikel, die durch unvollständige Sprayverdampfung entstehen, zu vermeiden.
- **Bismut:** Von besonderem Interesse ist, Bismutpartikel in der Flamme bis zum Metall zu reduzieren. Dies ohne die gleichzeitige Bildung von Rußverunreinigungen zu erreichen, erfordert eine hohes Maß an Detailverständnis und ggf. eine Anpassung der Zusammensetzung des Lösungsmittels.

## 6 Literaturverzeichnis

- [1] J. Menser, S. Kluge, T. Dreier, C. Schulz: *Approach to standardize a spray-flame nanoparticle synthesis burner* (Int. Workshop on Laser-induced Incandescence, Hven, Sweden, 2014)
- [2] C. Weise, J. Menser, H. Wlokas, T. Dreier, C. Schulz, A. Kempf, H. Wiggers: *Towards a standardized nanoparticle synthesis spray flame* (MRS Fall Meeting, Boston, 2014)
- [3] T. Dreier, C. Schulz *Powder Technol.* **287**, 226 (2016)
- [4] K. Hembroma, T.N. Rao, R.S. Srinivasa, A.R. Kulkarni: *J. Europ. Ceram. Soc.* **35**, 3535 (2015)
- [5] F. Schneider, S. Suleiman, J. Menser, E. Borukhovich, I. Wlokas, A. Kempf, H. Wiggers, C. Schulz: *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 085108 (2019)