



MAX-PLANCK-GESELLSCHAFT



39. Jahrestreffen Deutscher Katalytiker, Weimar, Deutschland, 15.-17.03.2006

Charakterisierung von HOPG-Modellkatalysatoren für die oxidative Dehydrierung von Ethylbenzol

Samer Aburous, Wolfgang Ranke* und Robert Schlögl

Department of Inorganic Chemistry, Fritz-Haber-Institute of the MPG, Faradayweg 4-6, 14195 Berlin, Germany

* Corresponding author: e-mail ranke@fhi-berlin.mpg.de, phone +49 30 8413 4523, fax +49 30 8413 4401

Abstract

Derzeit wird Styrol fast ausschließlich durch Dehydrierung von Ethylbenzol über K-promotierten Eisenoxiddkatalysatoren bei hoher Temperatur (600°C) und unter Zugabe von Dampf im Überschuss erzeugt. Nachteile sind niedriger Umsatz, hohe Temperatur, hoher Wasserdampfanteil und die Endothermie der Reaktion. Die oxidative Dehydrierung (ODH) über Katalysatoren auf Kohlenstoffbasis ist eine mögliche Alternative. Die Reaktion ist vollständig, exotherm, läuft bei niedrigerer Temperatur ab und benötigt keinen Wasserdampf. Es wurde vorgeschlagen [1], dass Sauerstoff enthaltende funktionale Gruppen an der Kohlenstoffoberfläche die aktiven Plätze sind. Unsere Modellstudien sollen Natur und Rolle dieser Gruppen sowie die Art ihrer Entstehung und Regenerierung aufklären.

Als Modellkatalysatoren werden HOPG- (Highly Ordered Pyrolytic Graphite) -Proben benutzt. Sie sind frei von Poren, haben eine wohldefinierte Oberflächenstruktur und Veränderungen können mit Methoden der Oberflächenanalyse untersucht werden. Die Proben werden im Ultrahochvakuum (UHV) präpariert und charakterisiert und dann in einen in-situ Mikroflussreaktor [2] überführt, der katalytische Messungen mit kontinuierlicher Produktanalyse unter realistischen Bedingungen erlaubt (Druck der Reaktanden ~10 mbar, Temperatur bis 600°C).

In einem ersten Schritt wurden funktionale Gruppen durch Ionenbeschuss mit einer Mischung von Argon und Sauerstoff erzeugt. Massenspektroskopische Messungen im Reaktor zeigten eine messbare katalytische ODH-Aktivität von Ethylbenzol. Um den Oberflächen-Sauerstoff zu charakterisieren wurde die Wechselwirkung von HOPG mit Sauerstoff genauer untersucht. Die durch den Beschuss erzeugte Unordnung erhöht die Reaktivität gegenüber Sauerstoff bei 520°C und führt zur Erzeugung von wesentlich mehr CO₂ als auf der glatten Oberfläche. Die auf Grund der Unordnung erzeugte CO₂-Menge kann einigen hundert Monolagen entsprechen und nimmt mit der Zeit durch Abbrennen der gestörten Lage ab. Ergebnisse der Charakterisierung der Sauerstoffgruppen mit Hilfe von Thermodesorptions-Spektroskopie (TDS) und Photoemission (XPS) werden vorgestellt.

References

- [1] G. Mestl, N.I. Maksimova, N. Keller, V.V. Roddatis, R. Schlögl, *Angew. Chem. Int. Ed.* 40 (2001) 2066.
- [2] C. Kuhrs, M. Swoboda, W. Weiss, *Topics in Catal.* 15 (2001) 13.