

Begeleider Servaas Lips	Promotoren Maarten Sabbe, Vladimir Galvita	Funding BOF
-----------------------------------	--	-----------------------

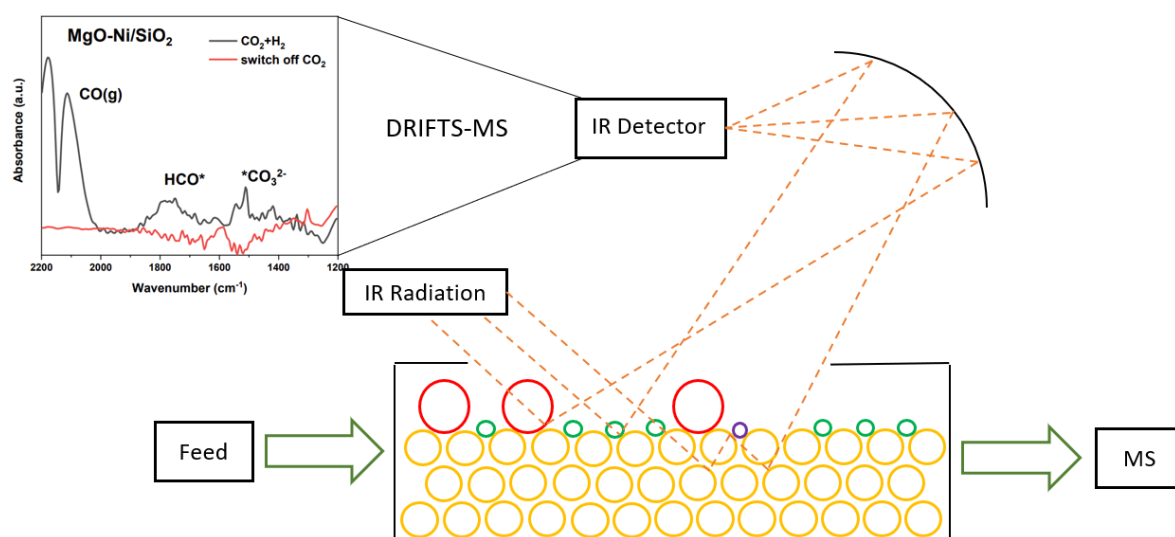
DRIFTS-MS operando katalysatorkarakterisering voor dehydratatie en hydrodeoxygenatie

Trefwoorden: heterogene katalyse, infraroodspectroscopie, operando karakterisering, alcoholdehydratie, hydrodeoxygenatie, biomassa

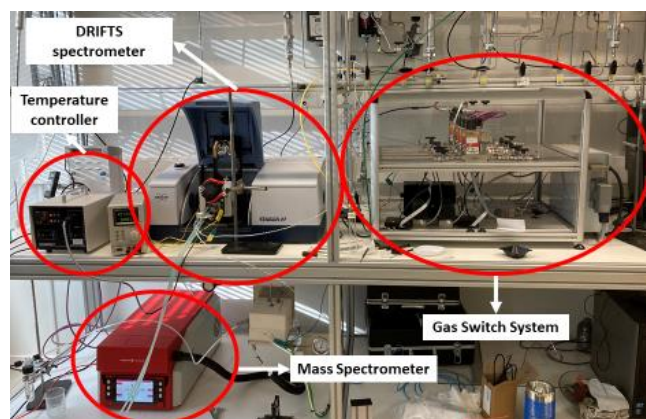
Probleemstelling

Een goed begrip van de oppervlakchemie bij heterogene katalyse is belangrijk voor de efficiënte ontwikkeling van nieuwe, betere katalysatoren. Helaas zijn de meeste analysetechnieken om katalysatoren te karakteriseren ontwikkeld voor lage temperaturen of drukken, waarbij dus geen reactie kan optreden. Operando karakteriseringstechnieken daarentegen kunnen de actieve katalysator tijdens de reactie te karakteriseren. Deze technieken zijn uiterst interessant om de reactie-intermediëren op het katalysatoroppervlak te analyseren en zo het reactiemechanisme beter te kunnen begrijpen. Deze informatie kan dan uiteindelijk worden gebruikt om betere katalysatoren te ontwerpen.

Een vrij eenvoudig toe te passen methode is diffuse reflectance infrared Fourier transform spectroscopy (DRIFTS), waarbij een gereflecteerd infraroodspectrum opgemeten wordt boven de katalysator in poedervorm (zie Figuur 1). De te meten katalysator bevindt zich in een kleine chemische reactor die ingebouwd is in de meetcel (zie Figuur 2). De infraroodabsorptie is functie van de vibraties die de moleculen kunnen ondergaan, en op die manier kan o.a. waargenomen worden welke chemische species zich op het oppervlak bevinden. De gevoeligheid van de resultaten voor interessante intermediëren kan verbeterd worden door modulatie-excitatiemethoden, waarbij typisch de concentratie van een bepaalde stof in de voeding gemoduleerd wordt.



Figuur 1: Schematische voorstelling van de DRIFTS set-up



Figuur 2: Foto DRIFTS set-up met aanduiding belangrijkste onderdelen

Deze metingen zullen uitgevoerd worden voor 2 interessante heterogeen gekatalyseerde reacties binnen de duurzame chemie waarvoor er heel wat openstaande onderzoeksvragen zijn: (i) de dehydratatie van alcoholen over zeolieten en (ii) de hydrodeoxygenatie van anisol met Ni-Cu katalysatoren. De dehydratatie van alcoholen laat toe om op basis van hernieuwbare alcoholen verkregen door fermentatie van biomassa nuttige korte alkenen te produceren, die de bouwstenen van de chemische industrie uitmaken. De hydrodeoxygenatie van anisol is een modelreactie voor het verlagen van het zuurstofgehalte van vloeibare biomassastromen, zodat de kwaliteit van biomassa als brandstof verbeterd wordt. De DRIFTS-cel waarop de metingen verricht zullen worden bestaat, maar de precieze manier waarop de metingen uitgevoerd kunnen worden moet nog vastgesteld worden.

Doelstelling

De doelstelling van deze masterproef is het vaststellen van de precieze manier waarop de experimenten in de operando DRIFTS-cel kunnen uitgevoerd worden op zo'n manier dat de conversies en selectiviteiten verkregen worden zoals ze waargenomen worden in standaard kinetische experimenten, en vervolgens de opstelling te gebruiken om bij stationaire condities de intermediären op het oppervlak zo goed als mogelijk te karakteriseren.

1. Opstellen van een experimenteel protocol voor het operando meten van de dehydratatie van alcoholen over zeolieten en de hydrodeoxygenatie van anisol over Ni-Cu katalysatoren
2. Karakteriseren van het reactieve oppervlak en detecteren van dominante reactie-intermediären bij stationaire condities
3. In kaart brengen welke modulaties van de reactant- en productconcentraties de signaal/ruisverhouding van het infraroodspectrum kunnen verbeteren en toelaten kinetisch relevante species te detecteren