

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

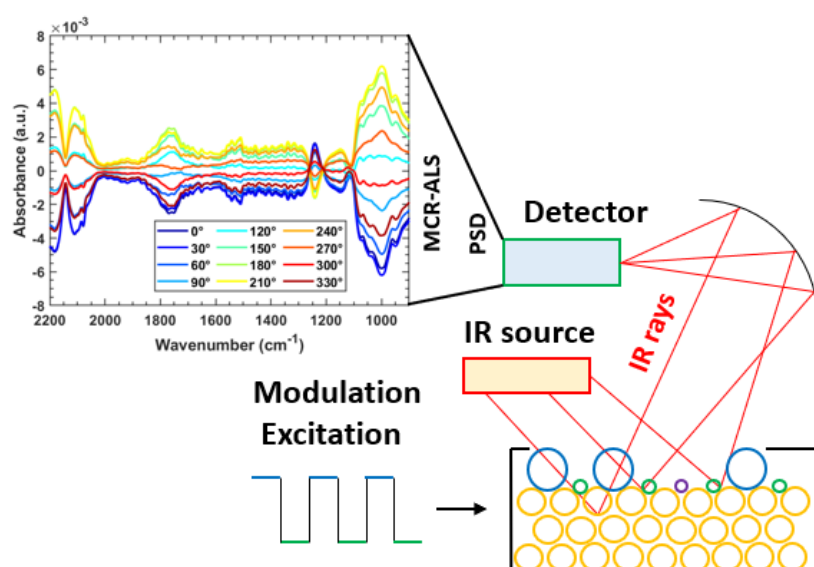
DRIFTS operando katalysatorkarakterisering voor CO₂-methanatie over Ni

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

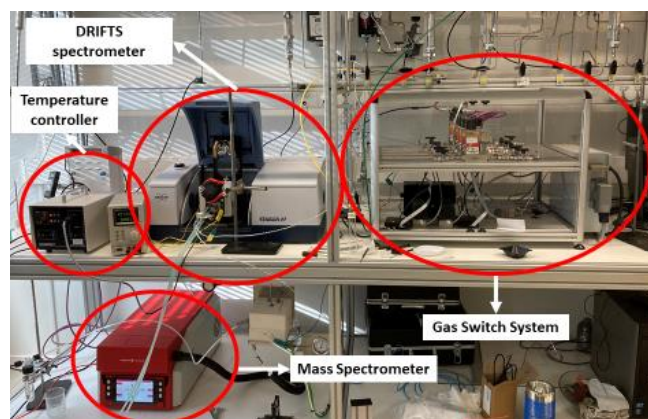
Probleemstelling

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 karakteriseren. Deze technieken zijn uiterst interessant om de reactie-intermediëren op het katalysatoroppervlak te analyseren en zo het reactiemechanisme beter te 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. 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 intermediären kan verbeterd worden door modulatie-excitatiemethoden, waarbij typisch de concentratie van een bepaalde stof in de voeding gemoduleerd wordt (zie Figuur 1).¹



Figuur 1: Schematische voorstelling van de DRIFTS set-up gecombineerd met een modulatie-excitatie experimenteel design



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

DRIFTS zal worden gebruikt om het reactiemechanisme van CO₂-methanatie over Ni te onderzoeken. Deze metingen worden uitgevoerd op zelf gesynthetiseerde katalysatoren. Katalysatoren zullen gesynthetiseerd worden volgens een dubbele *incipient wetness impregnation*, waarbij eerst Ni op Al₂O₃ wordt afgezet, gevolgd door de afzetting van een tweede oxide om uiteindelijk een katalysator zoals weergegeven op Figuur 3 te bekomen. Er worden verschillende oxides op een Ni/Al₂O₃ katalysator afgezet om de invloed van de aanwezigheid van deze oxides op het reactiemechanisme te bestuderen. De katalysatoren worden gekarakteriseerd om hun relevante eigenschappen te bepalen.



Figuur 3: Schematisch katalysatorontwerp met Al₂O₃ (groen), Ni (grijs) en een tweede oxide (oranje)

Doelstelling

1. Synthetiseren van een set X-Ni/Al₂O₃ katalysatoren
2. Karakterisatie van de gesynthetiseerde katalysatoren
3. DRIFTS metingen om het reactiemechanisme te bepalen

(1) Urakawa, A.; Bürgi, T.; Baiker, A. Sensitivity enhancement and dynamic behavior analysis by modulation excitation spectroscopy: Principle and application in heterogeneous catalysis. *Chemical Engineering Science* **2008**, 63 (20), 4902-4909. DOI: 10.1016/j.ces.2007.06.009.