

Neuartige mesoporöse Träger für die CO Oxidation an Au/TiO₂ Katalysatoren

Y. Denkwitz^{}, J. Geserick^{*}, U. Hörmann^{**}, V. Plzak^{***}, R. Leppelt,
U. Kaiser^{**}, N. Hüsing^{*}, R.J. Behm*

Institut für Oberflächenchemie und Katalyse, Universität Ulm, 89069 Ulm

^{}Institut für Anorganische Chemie I, Universität Ulm, 89069 Ulm*

*^{**}Zentrale Einrichtung Elektronenmikroskopie, Universität Ulm, 89069 Ulm*

*^{***}Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung, Helmholtzstr. 8, 89081
Ulm*

Zielsetzung

In den letzten Jahren wurde vielfach über die außerordentlich hohe Aktivität von Au/TiO₂ Katalysatoren für die CO Oxidation schon bei niedrigen Temperaturen berichtet [1]. Darüber hinaus besteht ein wachsendes Interesse an mesoporösen TiO₂ als Trägermaterial [2], da durch die Porenstruktur möglicherweise eine noch höhere Aktivität und Stabilität der Katalysatoren erzielt werden kann. Um die beiden Trägersysteme zu vergleichen, wurden verschiedene Goldkatalysatoren synthetisiert und hinsichtlich ihrer katalytischen Aktivität auf die CO Oxidation getestet.

Synthese und Charakterisierung

Für die Untersuchungen wurden zum einen kommerzielles TiO₂ (Degussa P25; 56 m²/g) als Träger eingesetzt. Zum anderen wurden nicht poröses (33 m²/g) und mesoporöses TiO₂ (65 m²/g, 140m²/g) nach den in [3] beschriebenen Verfahren und einer modifizierten Methode synthetisiert und als Träger verwendet. XRD Messungen zeigen, dass es sich bei den letzten drei Proben um reines Anatas handelt. Der Porendurchmesser, welcher mittels N₂ Porosimetrie über BJH Auswertung bestimmt wurde, liegt bei den mesoporösen Katalysatoren bei 3-7 nm. Die Träger wurden über ein 'Deposition/Precipitation' Verfahren mit Au beladen und der Au Gehalt mittels ICP-AES bestimmt [4]. Der Durchmesser der Au Partikel liegt zwischen 2 und 5 nm (TEM). Die mesoporösen Proben zeigen, dass das Gold sowohl in den Poren als auch auf der äußeren Oberfläche verteilt ist. Nach Konditionierung (30 min in O₂ bei 400 °C) der Au/TiO₂ Katalysatoren weisen diese nur metallisches Gold auf (XPS).

Ergebnisse und Diskussion

Aktivitätsmessungen (Abb. 1) am Au/TiO₂ (33 m²/g) Katalysator auf nicht mesoporösem TiO₂ bei 80 °C in 1 kPa CO, 1 kPa O₂, Rest N₂ zeigen eine um die Hälfte geringere Aktivität als an Katalysatoren auf Basis von P25 Trägern, was auf die geringere Oberfläche zurückzuführen ist. Der auf mesoporösem TiO₂ basierende Katalysator, mit einer ähnlichen BET-Oberfläche von 65 m²/g, zeigt eine vergleichbare Aktivität zum Au/TiO₂ (P25). Die höchste Aktivität wurde mit Au/TiO₂ (140 m²/g) gemessen. Hieraus kann man schließen, dass die höhere anfängliche Aktivität durch die größere Oberfläche der Katalysatoren erzielt wird. Interessanterweise zeigen die Katalysatoren mit Mesoporen eine geringere Deaktivierung im Vergleich zum Au/TiO₂ (P25). Da beide Probenträger (mesoporöses TiO₂ und P25) eine vergleichbare BET-Oberfläche aufweisen, kann dies auf eine Stabilisierung durch die Porenstruktur zurückgeführt werden.

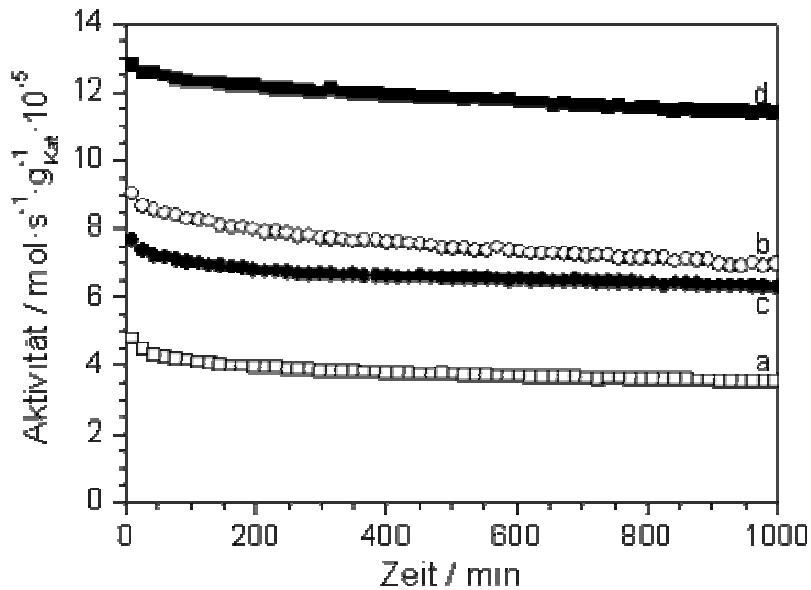


Abb. 1: Aktivität gemessen in 1 kPa CO, 1 kPa O₂, Rest N₂ bei 80°C an nicht porösen Au/TiO₂ Katalysatoren mit einer BET von (a) 33 und (b) 56 m²/g sowie an mesoporösem Au/TiO₂ mit einer BET von (c) 65 und (d) 140 m²/g.

Insgesamt zeigen die Daten, dass mesoporöses TiO₂ ein viel versprechender Träger für Au/TiO₂ Katalysatoren darstellt. Weitergehende Messungen zum Einfluss der Porenstruktur auf die Reaktionskinetik sowie zur Eignung dieser Katalysatoren für die selektive CO Oxidation sind angelaufen.

Literatur

- [1] M. Haruta, S. Tsubota, T. Kobayashi, H. Kageyama, M.J. Genet und B. Delmon, J. Catal., 144, 175 (1993).
- [2] S.H. Overbury, L. Ortiz-Soto, H. Zhu, B. Lee, M.D. Amiridis, S. Dai, Cat. Lett., 95, 99 (2004)
- [3] Y. Wang, X. Tang, L. Yin, W. Huang, Y. Rosenfeld und A. Gedanken, Adv. Mater., 12, 1183 (2000)
- [4] B. Schumacher, V. Plzak, M. Kinne und R.J. Behm, Cat. Lett., 89, 109 (2003)

Danksagung

Wir danken der DFG für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des Schwerpunktprogramm SPP1181.