

# Langzeitstabilität unkonditionierter Au/TiO<sub>2</sub> Katalysatoren für die CO Oxidation in verschiedenen Reaktionsatmosphären

Y. Denkwitz, Z. Zhao, U. Hörmann, U. Kaiser, V. Plzak, R.J. Behm

Prof. Dr. Jürgen Behm, Universität Ulm, Albert-Einstein-Allee 47, 89069 Ulm

In den letzten Jahren wurde vielfach über die außerordentlich hohe Aktivität von Au/TiO<sub>2</sub> Katalysatoren für die CO Oxidation schon bei niedrigen Temperaturen berichtet.<sup>[1]</sup> Jedoch zeigen diese Katalysatoren bei der CO Oxidation in idealisierter Reaktionsatmosphäre (1% CO, 1% O<sub>2</sub>, Rest N<sub>2</sub>) bei 80°C eine relativ starke Deaktivierung, welche auf die Bildung von Oberflächenkarbonaten zurückgeführt wird<sup>[2]</sup>, was sie für technische Anwendungen uninteressant macht. Typischerweise werden die Katalysatoren vor Reaktion bei 400°C kalziniert<sup>[2]</sup>. Untersuchungen an unkonditionierten Au/TiO<sub>2</sub> Katalysatoren in O<sub>2</sub> reicher Atmosphäre (1% CO, 20% O<sub>2</sub>, Rest N<sub>2</sub>) zeigen dagegen keine signifikante Deaktivierung sowie eine hohe Aktivität<sup>[3]</sup>. Um den Unterschied in der Stabilität herauszufinden, wurde die CO Oxidation an einem unkonditionierten Au/TiO<sub>2</sub> Katalysator in verschiedenen O<sub>2</sub> Atmosphären bei 30 und 80°C mittels kinetischer und IR spektroskopischer Untersuchungen sowie TEM und XPS verfolgt.

Der 3,1 Gew.-% Au/TiO<sub>2</sub> Katalysator, basierend auf kommerziellem TiO<sub>2</sub> (P25, Degussa), wurde mittels „deposition precipitation“ hergestellt [3] und in Luft bei 50°C getrocknet. Kinetische Messungen zeigen ein starkes Deaktivierungsverhalten der Katalysatoren während der CO Oxidation, wobei die Aktivität auf 7% bzw. 29% in idealisierter bzw. O<sub>2</sub>-reicher Atmosphäre bei 80°C sinkt. Die Deaktivierung ist sogar noch stärker ausgeprägt als bei der CO Oxidation an kalzinierten Katalysatoren bei vergleichbaren Reaktionsbedingungen. Die abnehmende Aktivität korreliert mit der Abnahme von adsorbiertem CO auf Au (2112-2120 cm<sup>-1</sup>) und der Zunahme von Karbonaten (1527 und 1357 cm<sup>-1</sup>) auf der Katalysatoroberfläche. Ex-situ Charakterisierung mittels TEM und XPS nach 2000 min Reaktion zeigen keine signifikante Veränderung der Partikelgröße (1.3±0.4 nm bzw. 1.8±0.7 nm vor und nach Reaktion) und des chemischen Zustandes von Au, womit Sintereffekte als Grund für den starken Aktivitätsverlust vernachlässigt werden können.

Insgesamt zeigen die Daten, dass die Deaktivierung durch die Karbonatbildung verursacht wird, welche möglicherweise die CO<sub>ad</sub>-Bedeckung und somit die Bildung von CO<sub>2</sub> verhindern.

Literatur:

[1] M. Haruta, S. Tsubota, T. Kobayashi, H. Kageyama, M.J. Genet, B. Delmon, *J. Catal.* **1993**, 144, 175. [2] B. Schumacher, V. Plzak, M. Kinne, R.J. Behm, *Cat. Lett.* **2003**, 89, 109. [3] E.A. Willneff, S. Braun, D. Rosenthal, H. Bluhm, M. Hävecker, E. Kleimenov, A. Knop-Gericke, R. Schlögl, S.L.M. Schröder, *J. Am. Chem. Soc.* **2006**, 128 12052.