

Abstract der Dissertation von Kristian Knemeyer mit dem Titel “Catalyst Synthesis and Modification via Atomic Layer Deposition”

English

Atomic layer deposition (ALD) was used as precise synthesis method for catalyst synthesis and modification. First, ALD process development on amorphous SiO₂ gel was conducted by depositing aluminum oxide and zinc oxide. The proof-of-concept studies showed that ALD on powders in fixed bed geometry can lead to controlled deposition under suitable reaction conditions. With a magnetic suspension balance in fixed bed geometry the growth behavior can be investigated *in situ* and self-limitation can be confirmed. Subsequently, the growth behavior of PO_x deposition on V₂O₅ was thoroughly analyzed and optimized to develop a deposition process with linear growth per cycle. The synthesized PO_x/V₂O₅ catalysts were then investigated in the selective oxidation of n-butane to maleic anhydride. To reveal the influence of P on the catalytic reaction, ten ALD cycles were conducted to vary the P/V surface ratio. Structure-performance correlation could be concluded with detailed analysis. ³¹P-NMR revealed structure motives which were relevant for the catalytic performance. Overall, it was shown that surface modification of bulk catalysts is possible and catalyst performances can be increased in the very first ALD cycles. Furthermore, a dedicated workflow for ALD process development was evolved for which two setups were designed. With one setup the vapor pressure of a given precursor can be measured and its reactivity tested in the second setup. Based on the vapor pressure and reactivity pre-selections can be made to enhance ALD process development.

Deutsch

Zur präzisen Synthese und Modifizierung von Katalysatoren wurde die Atomlagenabscheidung (ALD) verwendet. Um zu beweisen, dass ALD auf Pulvern in Festbetten durchgeführt werden kann, wurden Aluminiumoxid und Zinkoxid mittels ALD auf amorphem Silica-Gel abgeschieden. Mittels einer Magnetschwebewaage konnte das Wachstumsverhalten *in situ* verfolgt und die Selbstlimitierung in jedem Syntheseschritt bestätigt werden. Folglich wurde durch sorgfältige Analytik und Prozessoptimierung ein Abscheidungsprozess von PO_x auf V₂O₅ entwickelt. Die so synthetisierten Katalysatoren wurden in der selektiven Oxidation von n-Butan zu Maleinsäureanhydrid untersucht. Um den Einfluss von P auf die katalytische Reaktion zu untersuchen, wurden zehn verschiedene P Beladungen mittels ALD hergestellt. Struktur-Wirkungsbeziehungen konnten aufgeklärt werden. Dabei zeigte insbesondere die ³¹P-NMR Spektroskopie welche Strukturen relevant für gesteigerte Selektivitäten zu Maleinsäureanhydrid sind. Insgesamt konnte gezeigt werden, dass die Oberflächenmodifizierung von Katalysatoren mittels ALD möglich ist und sich positive Effekte schon in den ersten ALD Zyklen zeigen. Zusätzlich wurden zwei Anlagen zur systematischen Prozessentwicklung von ALD Prozessen konzipiert. Mit denen können Dampfdruck und Reaktivität eines Vorläufers bestimmt werden. Basierend auf dessen Eigenschaften werden Vorauswahlen getroffen und somit die Prozessentwicklung wesentlich effizienter gestaltet.