

Kurzfassung

Atomic Layer Deposition (ALD) bietet ein enormes Potenzial, um das "material gap" zwischen der klassischen Oberflächenwissenschaft und der heterogenen Hochleistungskatalyse zu schließen. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Frage, ob und inwieweit ALD für die Modifikation von industriell relevanten heterogenen Katalysatoren eingesetzt werden kann. Wesentliche Herausforderungen waren die Beschichtung von Partikelsystemen und die Modifikation anspruchsvoller katalytisch aktiver Materialien mit hohen Oberflächen.

Der erste Teil der Arbeit präsentiert eine Proof-of-Concept Studie über ALD an Oxidationskatalysatoren. Hier wurde V_2O_5 mit Phosphor modifiziert und als vereinfachtes Modell für den Vanadylpyrophosphat Katalysator VPP verwendet, welcher industriell für die selektive Oxidation von *n*-Butan zu Maleinsäureanhydrid eingesetzt wird. Die mit ALD synthetisierten P/ V_2O_5 Katalysatoren wurden gegen herkömmlich synthetisierte P/ V_2O_5 -Katalysatoren und die V_2O_5 -Referenz getestet. Es wurde gezeigt, dass ALD die überlegene Synthesemethode ist und dass P auf der Oberfläche von V_2O_5 selektive Zentren generiert, was im Einklang mit den jüngsten Erkenntnissen über die selektiven Zentren des VPP steht.

Der zweite Teil stellt das Design, den Betrieb und die Validierung eines neuartigen, modularen ALD Setups vor. Hier werden Festbettreaktoren zur Beschichtung von Partikeln eingesetzt. Die Integration einer *in situ* Gravimetrie ermöglicht eine herausragende Kontrolle der ALD Prozesse direkt auf den Partikelsystemen. Die Validierung erfolgte mit einem bekannten ALD-Prozess auf einem hochoberflächigem Trägermaterial (Al_2O_3 auf mesoporösem SiO_2). Darüber hinaus bestätigten Scale-Up Experimente die leichte Aufskalierbarkeit von Festbettreaktoren für ALD.

Abstract

Atomic Layer Deposition (ALD) comprises enormous potential to help bridging the "material gap" between classical surface science and high-performance heterogeneous catalysis. The present work deals with the question whether and to what extent ALD can be used for the modification of industrially relevant catalytic systems. Main challenges comprised the functional coating of particulate substrates and the modification of demanding catalytically active materials featuring high surface-areas.

The first part of the thesis presents an initial proof-of-concept study for ALD on oxidation catalysts, conducted on a commercial ALD tool. Here, V_2O_5 partially covered with phosphorus was applied as a highly simplified model for the vanadylpyrophosphate catalyst VPP, industrially used for the selective oxidation of *n*-butane to maleic anhydride. The P/ V_2O_5 catalysts synthesized with ALD were tested against traditionally synthesized P/ V_2O_5 catalyst *via* impregnation and the unselective V_2O_5 reference. It is shown, that ALD achieves superior results and that P on the surface of V_2O_5 has an enhancing effect on the selectivity, which is in agreement with the recent studies on the selective site of the VPP catalyst.

The second part presents the design, operation and validation of a novel, complete, stand-alone, modular ALD setup using fixed-bed reactors for the coating of particles. The setup comprises as a novelty the integration of an *in situ* gravimetry, which offers control of the ALD processes directly on the used particulate systems. The validation of the setup was carried out with a known ALD process on a high surface support material for heterogeneous catalysts (Al_2O_3 on mesoporous SiO_2). In addition, a scale-up experiment confirmed the scalability of fixed bed reactors for ALD.