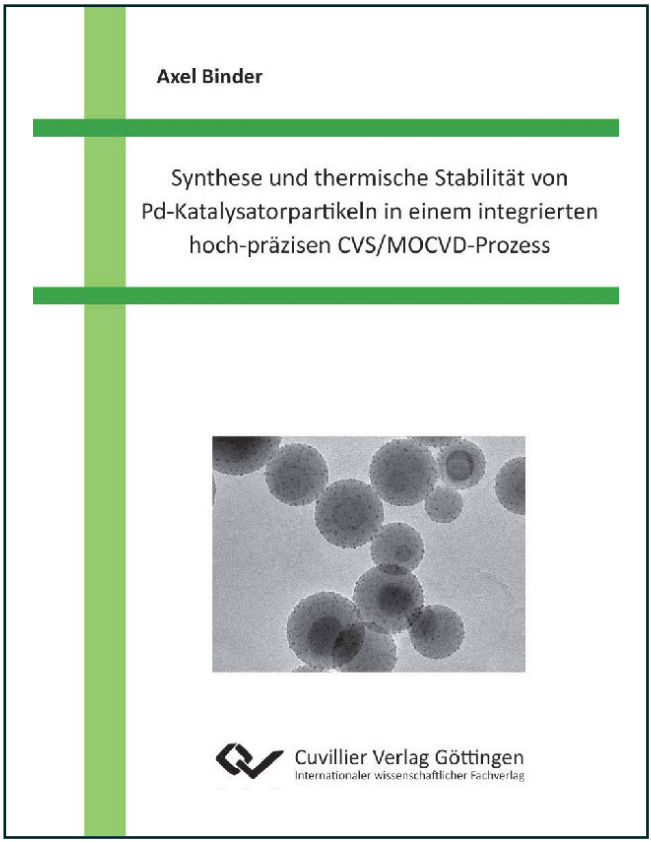
Axel Binder (Autor)

Synthese und thermische Stabilität von Pd-Katalysatorpartikeln in einem integrierten hoch-präzisen CVS/MOCVD-Prozess



https://cuvillier.de/de/shop/publications/542

Copyright:
Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentzsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen, Germany
Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: https://cuvillier.de

Inhaltsverzeichnis

Teil I Einleitung und Zielsetzung ... 1

1 Einleitung ... 3

2 Zielsetzung ... 4

3 Beschichtung von Partikeln in der Gasphase – ein Literaturüberblick ... 5

Teil II Herstellung und Konditionierung der oxidischen Trägerpartikeln ... 11

3 Herstellung der Trägerpartikeln mittels Chemical Vapor Synthesis ... 13

3.1 Partikelsynthese aus der Gasphase (durch Chemical Vapor Synthesis) ... 14

3.2 Aufbau der CVS-Versuchsanlage ... 18

3.3 Charakterisierung der Trägerpartikeln ... 20

3.3.1 Aluminiumoxid ... 21

3.3.2 Eisenoxid ... 25

3.3.3 Siliziumdioxid ... 31

3.3.4 Titandioxid ... 34

4 Konditionierung der Trägerpartikeln ... 39

4.1 Einstellen der OH-Gruppendichte der oxidischen Partikeln im CVS-Prozess ... 41

4.2 Messmethoden zur Ermittlung der OH-Gruppendichte oxidischer Partikeln ... 44

4.2.1 Thermo-Gravimetrie ... 44

4.2.2 Ermittlung der OH-Gruppendichten mittels IR-Spektroskopie ... 46

4.3 Resultierende OH-Gruppendichten der konditionierten Trägerpartikeln ... 49

4.4 Funktionalisierung der Eisenoxidpartikeln ... 52

5 Zusammenfassung ... 56

Teil III Funktionalisierung der Trägerpartikeln mittels Chemical Vapor Deposition ... 57

6 Grundlagen des MOCVD-Verfahrens ... 59

6.1 Das CVD-Verfahren ... 59

6.2 Nukleation und Wachstum ... 62

6.3 Anforderungen an MOCVD-Precursoren ... 67

6.4 Die metallorganische Substanz Cyclopentadienyl(allyl)Palladium 68

6.5 Zersetzungsmechanismen des Pd(allyl)Cps 70

6.5.1 Einfluss der funktionellen Substratoberflächengruppen 72

7 Experimenteller Aufbau des MOCVD-Prozesses 74

7.1 Versuchsanordnung zum Beschichten der Trägerpartikeln mittels MOCVD 74

7.2 Online-Messverfahren zur Bestimmung der abgeschiedenen Pd-Menge – die Niederdruck-Trägheitsspektroskopie 76

7.2.1 Messprinzip 76

7.2.2 Experimenteller Aufbau 78

7.2.3 Ermittlung der äquivalenten Schichtdicke $s_{äq}$ 79

8 Versuchsergebnisse zur Beschichtung von Trägerpartikeln 80

8.1 Beschreibung der resultierenden Pd-Partikelmorphologien und deren Einflussparameter 81

8.1.1 Einfluss der Pd-Precursorkonzentration 81

8.1.2 Einfluss der Trägerpartikelgröße 85

8.1.3 Einfluss der CVD-Reaktionstemperatur 87

8.2 Beschichtung von Trägerpartikeln mit funktionalisierten Oberflächen 90

8.3 Wachstumsgeschwindigkeit der Pd-Partikeln 95

8.4 Autokatalyse vs. OH-Gruppenzersetzung (zweistufiger CVD-Prozess) 97

9 Abschließende Bemerkungen zur Pd-Partikelbildung 101

Teil IV Untersuchung der katalytischen Aktivität der geträgerten Pd-Partikeln anhand einer Hydrierreaktion 103

10 Grundlagen der Ethenhydrierung und der Struktursensitivität 105

11 Experimentelle Vorgehensweise 109

12 Versuchsergebnisse 111

12.1 Bestimmung der kinetischen Parameter am System Pd/SiO_2 111

12.1.1 Bestimmung der Reaktionsordnungen 112

12.1.2 Bestimmung der Aktivierungsenergie 113

12.2 Untersuchungen zur Struktursensitivität 116

13 Zusammenfassung 119

Teil V Thermische Stabilität gasgetragener und geträgerter Pd-Nanopartikeln 121

14 Einleitung 123

15 Sintern gasgetragener Pd-Partikeln 124

15.1 Gezielte Untersuchung der Kontaktart (d_{prim} = 10 nm) 126

15.1.1 Beschichtung der agglomerierten Partikeln 128

15.1.2 Beschichtung der Primärpartikeln 131

15.2 Versuche mit frisch generiertem Pd-Aerosol (d_{prim} = 2.5 nm) 134

15.2.1 Simultanes Beschichten und Sintern 134

15.2.2 Sequentielles Beschichten und Sintern unter Reaktivgaszugabe 141

16 Sinterverhalten der geträgerten Pd-Partikeln 147

16.1 Grundlagen des Sinterns geträgerter Partikeln 147

16.2 Einflüsse auf das Sinterverhalten der geträgerten Pd-Partikeln 151

16.3 Einfluss der Pd-Beladung auf das Sinterverhalten auf SiO_2 153

16.4 Einfluss des Trägermaterials 155

17 Stabilisierung der geträgerten Pd-Partikeln 158

17.1 Modifizierung der Trägerpartikeln 159

17.2 Dotierung mit Hafniumoxid 167

17.2.1 Variation der Sintertemperatur 171

17.2.2 Einfluss der Hf-Precursorkonzentration 175

17.2.3 Einfluss der HfO_x-Dotierung auf die katalytische Aktivität 177

18 Abschließende Bemerkungen 179

Teil VI Zusammenfassung 181

Teil VII Abkürzungen und Symbole 187

Teil VIII Anhang 191

19 Projekte, Veröffentlichungen und Vorträge 191

19.1 Projekte 191

19.2 Publikationen 191

19.3 Präsentationen auf Fachtagungen 192

19.3.1 Vorträge 192

19.3.2 Posterpräsentationen 193

19.4 Studentische Arbeiten 194

Teil IX Literatur 195