



Jana Engeldinger (Autor)

Mechanistische Untersuchungen zur heterogen-katalysierten oxidativen Carbonylierung von Methanol zu Dimethylcarbonat



<https://cuvillier.de/de/shop/publications/6124>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen, Germany

Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>



Inhalt

Vorwort	i
Zusammenfassung	ii
Abstract	iii
1 Einleitung	1
1.1 Motivation und Zielsetzung	1
1.2 Stand der Forschung	3
1.2.1 Oxidative Carbonylierung von Methanol zu Dimethylcarbonat	3
1.2.2 Operando-Techniken	6
2 Experimentelle Vorgehensweise	8
2.1 Operando-spektroskopische Methoden	8
2.1.1 Gasversorgung	9
2.1.2 Diffuse-Reflexions-Infrarot-Fourier-Transformations-Spektroskopie (DRIFTS)	14
2.1.2.1 Die Reaktionszelle	15
2.1.2.2 Das Spiegelsystem	16
2.1.3 UV-Vis-Spektroskopie in diffuser Reflexion (UV-Vis-DRS)	16
2.1.4 Massenspektrometrie	17
2.1.5 Methodenkopplung (DRIFTS/UV-Vis-DRS/MS)	18
2.1.5.1 Durchführung von DRIFTS/UV-Vis-DRS/MS-Messungen	19
2.2 Katalysatorpräparation	22
2.3 Methoden der Katalysator-Charakterisierung	24
2.3.1 Stickstoff-Adsorption	24
2.3.2 Röntgendiffraktometrie	24
2.3.3 Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie	25
2.3.4 Infrarot-Spektroskopie mit Sondenmolekülen	25
2.3.5 Katalytische Testung	26
3 Charakterisierung der Katalysatoren	28
3.1 Kupfergehalt, Oberfläche und Porenvolumen	28
3.2 Kristalline Phasen	29
3.3 Charakterisierung der Kupfer-Spezies	30



3.4	Oxidationszustand und Koordinationsphäre der Cu-Spezies.....	33
3.5	IR-spektroskopische Charakterisierung.....	37
3.6	Position der Cu(II)- und Cu(I)-Spezies im Y-Zeolithen	38
3.7	Azidität	44
3.8	Katalytische Testung.....	46
3.9	Zusammenfassung.....	48
4	Operando-spektroskopische Untersuchungen.....	50
4.1	Massenspektrometrische Voruntersuchungen	51
4.1.1	Massenspektrometrische Analyse der Produkte.....	51
4.1.2	Massenspektrometrische Analyse der Edukte.....	53
4.1.3	Massenspektrometrische Analyse isotoopenmarkierter Edukte.....	56
4.2	Wechselwirkungen der Produkte und Edukte mit dem Katalysator	57
4.2.1	Produkte	57
4.2.2	Sauerstoff	59
4.2.3	$^{12}\text{CO}/^{13}\text{CO}$	60
4.2.4	$\text{CO}/^{16}\text{O}_2$ und $\text{CO}/^{18}\text{O}_2$	63
4.2.5	MeOH.....	65
4.2.6	$\text{MeOH}/^{16}\text{O}_2$ und $\text{MeOH}/^{18}\text{O}_2$	71
4.2.7	MeOH/CO	77
4.2.8	MeOH/CO/O ₂	81
4.2.9	MeOH-Adsorption nach CO/O ₂ -Voradsorption.....	83
4.3	Der Mechanismus der oxidativen Carbonylierung von MeOH.....	84
4.3.1	MMC-Bildung.....	85
4.3.2	DMC-Bildung.....	86
4.4	Zusammenfassung.....	90
5	Schlussfolgerung.....	92
6	Literatur	I
7	Anhang.....	VI
	Abkürzungsverzeichnis.....	VIII
	Veröffentlichungen.....	X



Wissenschaftlicher Lebenslauf..... XIII

Erklärungen..... XV