



Alexandra Inayat (Autor)

Basische Festkörperkatalysatoren für die Nutzung nachwachsender Rohstoffe

*Die Bedeutung von Textur- und Oberflächeneigenschaften in der
p-Cymen-Synthese*



<https://cuvillier.de/de/shop/publications/6757>

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>



Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Literaturübersicht zu basischen Festkörperkatalysatoren	6
2.1	Genereller Überblick	6
2.2	Layered Double Hydroxides (LDHs)	9
2.2.1	Struktur, Eigenschaften und Einsatzgebiete	9
2.2.2	Methoden zur Herstellung von LDHs mit unterschiedlicher Kristallgröße	13
2.2.3	Möglichkeiten zur Variation der Zwischenschichtanionen	18
2.3	Mischoxide (MMOs)	20
2.3.1	Struktur und Eigenschaften	20
2.3.2	Einsatzgebiete von Mischoxiden	21
2.3.3	Möglichkeiten zur Herstellung von Mischoxiden	22
2.4	Zeolithe	24
2.4.1	Struktur, Eigenschaften und Verwendung von Zeolith X	24
2.4.2	Methoden zur Texturvariation an Zeolithen	26
2.5	Möglichkeiten zur Charakterisierung der Säure–Base–Eigenschaften von Festkörpern	30
2.6	Dehydroisomerisierung von Limonen zu p–Cymen	39
2.6.1	Bedeutung	39
2.6.2	Katalysatoren für die Dehydroisomerisierung	41
2.6.3	Mechanismus	42
3	Aufgabenstellung	45
4	Beschreibung der Experimente, Mess- und Auswertemethoden	47
4.1	Zn/Al–LDH–Synthesen	47
4.1.1	Urea–Methode	47
4.1.2	Titrationmethode	49
4.2	Zn/Al–MMO–Herstellung	49



4.3	Zeolith-X-Synthesen	50
4.3.1	Synthese von konventionellem Zeolith X (X-mikro)	50
4.3.2	Synthese von mesoporösen Zeolith-X-Nanoschichtaggregationen (X-meso)	51
4.3.3	Herstellung des Organosilantemplates TPHAC	52
4.3.4	Ionenaustausch	54
4.4	Katalysatorpräparation (Formgebung mit Pelletiermethoden R1 und R2)	55
4.5	Analytik	56
4.5.1	Röntgendiffraktometrie (XRD)	56
4.5.2	XRK-Messungen (in-situ XRD)	57
4.5.3	Stickstofftieftemperaturadsorption	58
4.5.4	Elektronenmikroskopie (REM und TEM)	60
4.5.5	Temperaturprogrammierte Desorption (TPD)	60
4.5.5.1	TPD mit CO ₂ und NH ₃	60
4.5.5.2	TPD mit Pyrrol	61
4.5.6	IR-Spektroskopie	63
4.5.7	Thermogravimetrie (TG), mit Massenspektrometerkopplung (TG-MS)	63
4.5.8	Elementaranalyse (ICP)	64
4.5.9	Festkörper-NMR	64
4.5.10	Amin-Titration	64
4.6	Katalytische Testung (Dehydroisomerisierung von Limonen)	65
5	Ergebnisse und Diskussion	75
5.1	Charakterisierung der Zn/Al-LDHs und Zn/Al-Mischoxide (Pulverform)	75
5.1.1	Variation des Bruchkantengehaltes (Plättchengröße)	75
5.1.2	Korrelation zwischen LDH-NO ₃ /CO ₃ -Phasenverhältnis und externem ZnO	82
5.1.3	Variation des Zn/Al-Molverhältnisses	93
5.2	Die Zn/Al-MMO-Katalysatoren	98
5.2.1	Struktur, Morphologie, Zusammensetzung und Textur	100
5.2.2	Säure-Base-Eigenschaften (TPD-Untersuchungen mit CO ₂ , NH ₃ und Pyrrol)	103
5.2.2.1	Effekt von externem ZnO (Oberflächen-ZnO-Kristalle)	105
5.2.2.2	Effekt des Zn/Al-Molverhältnisses	110
5.2.2.3	Einfluss des Bruchkantengehaltes	111
5.2.3	Katalytische Performance: Dehydroisomerisierung von Limonen zu p-Cymen	112
5.2.3.1	Einfluss des Bruchkantengehaltes	115
5.2.3.2	Effekt von externem ZnO	117



5.2.3.3	Effekt des Zn/Al-Molverhältnisses	121
5.3	Charakterisierung der Zeolith-X-Proben mit unterschiedlicher Textur	124
5.3.1	Mesoporöse NaX-Nanoschicht-Aggregationen	124
5.3.1.1	Einfluss von M ₂ O-Menge und K ₂ O-Zusätzen	125
5.3.1.2	Einfluss der TPHAC-Menge	130
5.3.1.3	Einfluss von Kristallisationstemperatur und -zeit	134
5.3.1.4	Sonstige Einflussfaktoren	138
5.3.2	Konventioneller Zeolith X (Referenzversuche zum Synthesefeld)	142
5.3.2.1	Einfluss von Na ₂ O und K ₂ O-Zusätzen	142
5.3.2.2	Sonstige Einflussfaktoren	145
5.3.3	Vergleich zwischen NaX-mikro und NaX-meso	145
5.4	Die KX-Katalysatoren (Pelletform)	148
5.4.1	Struktur, Morphologie, Zusammensetzung und Textur	148
5.4.2	Säure-Base-Eigenschaften	153
5.4.3	Katalytische Performance: Dehydroisomerisierung von Limonen zu p-Cymen	154
5.5	Vergleich zwischen Zn/Al-MMO-Katalysatoren und KX-Katalysatoren	162
5.5.1	Säure-Base-Eigenschaften	163
5.5.2	Katalytische Performance	165
6	Zusammenfassung und Ausblick	170
A	Anhang	175
A.1	XRD-Indizierung für nitrathaltige Zn/Al-LDHs	175
A.2	pH-Wert-Abhängigkeit der LDH-Syntheselösung von der Rührerdrehzahl	179
A.3	Charakterisierung des ZnO-Precursors	180
A.4	Übersichtsgrafiken zur Dehydroisomerisierung von Limonen zu p-Cymen über Zn/Al-MMO-Katalysatoren	181
A.5	TG-Kurven der KX-Katalysatoren	191
A.6	Modell zur Korrelation von externer Oberfläche und Mikroporenvolumen bei FAU- Zeolithen	192
A.7	IR-Spektren von Pyrrol auf einem Zn/Al-Mischoxid	205
A.8	Spezifikation der verwendeten Chemikalien und Materialien	206
	Literaturverzeichnis	207
B	Symbole und Abkürzungen	224