

Mikrokinetik der oxidativen Methanaktivierung an einem $\text{Li}_2\text{O}/\text{MgO}$ -Katalysator unter Einfluss der Festkörper- und Oberflächenrekonstruktionsprozesse

Projektleiter: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Frank Behrendt
Bearbeiter: Yunfei Kuo

Motivation

In den letzten Jahren wurde dem Erdgas und seiner Hauptkomponente Methan CH_4 ein beständig steigendes Interesse entgegengebracht, da es zum einen als Grundlage für flüssige Antriebsstoffe dienen kann, zum anderen aber die Umwelt belastet, wenn es ungenutzt austritt oder abgepackelt wird.

Bei der Vorortverwertung von Erdgas sind direkte Verfahren, die ein Synthesegas vermeiden, einfacher zu realisieren. Aus diesem Grund befasst sich die derzeitige Forschung insbesondere mit der direkten Konversion von Methan zu Ethan und der Dehydrierung zu Ethen, die unter den Begriff „Oxidative Kopplung von Methan“ zusammengefasst sind. Die aktuell erzielbare Raum-Zeit-Ausbeute lässt jedoch eine industrielle Umsetzung dieses Verfahrens unter heutigen Marktbedingungen nicht zu.

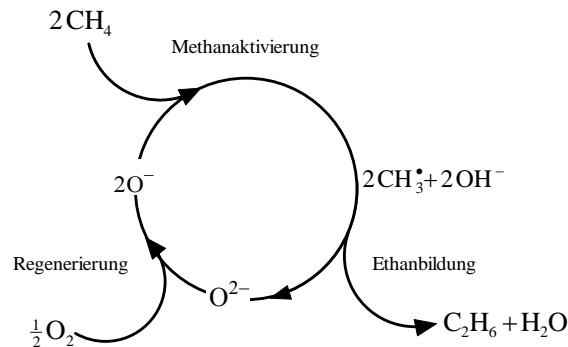
Um diese Prozesse wirtschaftlich und ökologisch vertretbar durchführen zu können, ist es notwendig, genaue quantitative Kenntnisse über die ablaufenden chemischen Vorgänge zu haben. Dies ist die Motivation für eine intensive wissenschaftliche Beschäftigung mit den Konversionsprozessen des Methans.

Problemstellung

Die oxidative Methankopplung befolgt einen einzigartigen homogenen/ heterogenen Reaktionsmechanismus mit z. T. noch unbekanntem Spezies. Von den unterschiedlichen Katalysatorsystemen wurde das System $\text{Li}_2\text{O}/\text{MgO}$ bisher wohl am eingehendsten untersucht. Dieses Katalysatorsystem geht auf Arbeiten von Lundsford und Mitarbeiter zurück. Der wichtigste katalytische Reaktionsschritt ist hierbei die Erzeugung von Methylradikalen.

Eine Vielzahl von wissenschaftlichen Arbeiten beschäftigte sich in der Vergangenheit mit dieser Thematik. Die in der Literatur beschriebenen Studien umfassen theoretische Arbeiten zur Aktivierung von Methan, spezifische Untersuchungen zum Nachweis aktiver Zentren sowie wichtiger Zwischenprodukte, Arbeiten mit Isotop-Markierten Edukten zur Aufklärung der wesentlichen Reaktionspfade und

der Rolle des Gittersauerstoffs der Katalysatoren, sowie vor allem klassische kinetische Untersuchungen, bei denen Umsätze, Ausbeuten oder auch Stoffmengenänderungsgeschwindigkeiten der beteiligten Reaktionspartner in Abhängigkeit der Versuchsbedingungen ermittelt wurden.



Katalytischer Zyklus für das Li/MgO Katalysatorsystem nach Ito und Lunsford

Lösungsansatz

Ein bislang unzureichend untersuchter Gesichtspunkt ist der Einfluss der Koadsorption der Produkte CO_2 und H_2O auf das Verhalten von Oxidkatalysatoren.

Ziel ist es hierbei die Gewinnung von mikrokinetischen Informationen über die simultan ablaufenden Festkörper- und Gasphasenprozesse zur Ableitung von Strategien für die Überwindung von existierenden Selektivitätslimitierungen. Durch in-situ β -NMR-Messungen können die strukturellen und dynamischen Auswirkungen der Li-Dotierung unter Reaktionsbedingungen erfasst werden. Dabei sollen insbesondere die Festkörper- und Oberflächenrekonstruktionsvorgänge, die durch Wechselwirkung vom Katalysator mit Edukten und Produkten eintreten, Berücksichtigung finden.

Die so gewonnenen Informationen werden in einem mikrokinetischen Modell integriert, welches zum Verständnis des komplexen Zusammenspiels zwischen Gasphasenbedingungen, Oberfläche und Volumenstruktur des Katalysators beitragen soll.