Summary

This work focuses on the direct conversion of benzene to phenol over zeolite catalysts using N₂O. Gas phase hydroxylation of benzene to phenol in one step is an attractive option. The zeolite catalysts were used for the direct synthesis of phenol and the reaction conditions have been optimized for improving the yield of phenol. To develop novel catalyst compositions metal-doped zeolite catalysts were applied for initial catalyst screening tests. All metals (1 wt% each) belonging to 3d series (i.e. starting from Sc to Zn) and Pd, Ru were impregnated separately onto the ZSM-5 support and tested. Twelve different monometallic catalysts were investigated. Among the twelve different monometallic catalysts tested, the vanadium doped catalyst (V/ZSM-5) was found to exhibit the best catalytic performance followed by the titanium (Ti/ZSM-5) doped one. Five different zeolites such as Ga-ZSM-5; ZSM-5, USY; BEA and Mordenite were selected using the best V-Ti composition. Among these catalysts, Ga-ZSM-5 showed the best performance with significantly high yields of phenol at sufficiently high conversion of benzene.

Zusammenfassung

Diese Doktorarbeit beschäftigt sich mit der direkten Umsetzung von Benzol zu Phenol über Zeolithkatalysatoren unter Verwendung von N₂O. Die Gasphasenhydroxylierung von Benzol zu Phenol in einem Schritt ist eine attraktive Option. Die Zeolithkatalysatoren wurden für die direkte Synthese von Phenol angewendet und auch die Reaktionsbedingungen hinsichtlich der Verbesserung der Phenolausbeute optimiert. In Bezug auf die Entwicklung neuer Katalysatorzusammensetzungen wurden zu Beginn metalldotierte Zeolithkatalysatoren für die Katalysatorentwicklung ausgewählt. Alle Metalle (jeweils 1 Gew.%), die zu der 3d-Reihe (d.h. von Sc bis Zn) und Pd, Ru gehören, wurden jeweils auf den ZSM-5-Träger imprägniert und getestet. Es wurden zwölf verschiedene monometallische Katalysatoren untersucht. Unter den zwölf verschiedenen getesteten monometallischen Katalysatoren zeigte sich, dass der Vanadium-dotierte Katalysator (V/ZSM-5) die beste katalytische Leistung zeigte, gefolgt von dotiertem Titan (Ti/ZSM-5). Fünf verschiedene Zeolithe wie Ga-ZSM-5; ZSM-5, USY; BEA und Mordenit wurden unter Verwendung der besten V-Ti Zusammensetzung ausgewählt. Von diesen Katalysatoren zeigte Ga-ZSM-5 die beste Leistung mit signifikant hohen Phenolausbeuten bei hinreichend hoher Umwandlung von Benzol.