

Summary

This work focuses on the conversion of low-value glycerol to triacetin by means of acetylation over solid acid catalysts in liquid and gas phase. Highly acidic catalysts such as Ion-exchange resins (Amberlyst-15 and Amberlyst-70) and supported heteropolyacids (HPA) were studied using toluene as an entrainer in liquid phase (batch operation). The high activity of Amberlyst catalysts strongly depends on the specific acidity, whereas the activity of the supported HPA catalysts is influenced in stabilization of Keggin structure by the support. Low acidic catalysts like SiO₂-based mixed metal oxides (TiO₂, MgO, ZrO₂, SrO and Sc₂O₃) and SiO₂-TiO₂ composites (Ti-SiO₂, Ti-SBA-15 and Ti-MCM-41) were evaluated in continuous gas phase glycerol acetylation. Among these catalysts, SiO₂-TiO₂ composites showed the best activity and selectivity towards desired triacetin. The characterization revealed that the high catalytic activity of the composites should be related to the formation of Si-O-Ti bonds within the silica matrix.

Zusammenfassung

Diese Doktorarbeit beschäftigt sich mit der Umsetzung von Glycerol zu Triacetin mit Hilfe von sauren Feststoffkatalysatoren. Die Reaktion erfolgte sowohl in der Gasphase (kontinuierlicher Aufbau) als auch in der Flüssigphase (Batch-Aufbau). Stark saure Katalysatoren wie Amberlyst und Heteropolysäuren (HPA) wurden in der Flüssigphase, mit Toluol als Schleppmittel, untersucht. Dabei zeigte sich, dass die katalytische Aktivität des Amberlysts stark von der Anzahl an Säurezentren (Brønsted acid sites) abhängt, hingegen die Aktivität des getragerten HPA von der Art des Trägermaterials beeinflusst wird. Für die Gasphase wurden schwach-saure Katalysatoren, wie Mischung von Metalloxiden (TiO₂, MgO, ZrO₂, SrO und Sc₂O₃) mit Siliziumdioxid oder SiO₂-TiO₂- Composite (SiTi30, Ti-SiO₂, Ti-SBA-15 und Ti-MCM-41) verwendet. Die Composite lieferten die beste katalytische Aktivität und Selektivität für Triacetin im Vergleich zu den Metalloid-Mischungen, aufgrund der Ausbildung von Si-O-Ti- Bindungen in der Siliziumdioxid-Matrix.