

---

FCSE

# 氟化钾后处理钛硅分子筛MWW用于丙烯环氧化反应

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/34017.html>

*本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！*

FCSE 氟化钾后处理钛硅分子筛MWW用于丙烯环氧化反应。论文标题：Post-treatment of Ti-MWW zeolite with potassium fluoride for propylene epoxidation

期刊：Frontiers of Chemical Science and Engineering

作者：Xintong Li, Xianchen Gong, Jilong Wang, Shengbo Jin, Hao Xu, Peng Wu

发表时间：15 Aug 2024

DOI：10.1007/s11705-024-2441-1

微信链接：点击此处阅读微信文章

丙烯环氧化反应是制备环氧丙烷（PO）的核心化工过程，其产物作为聚氨酯、表面活性剂等工业原料具有重要价值。相较于传统氯醇法，基于钛硅分子筛和过氧化氢（H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>）的HPPO工艺因对环境友好备受关注，但催化剂在实际应用中面临双重挑战，即成型工艺中粘结剂堵塞微孔影响传质效率，但通过二次结晶去除粘结剂后新生成的硅醇基团（Si-OH）又会导致副反应增多和H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>的无效分解。

## Post-treatment of Ti-MWW zeolite with potassium fluoride for propylene epoxidation

Xintong Li, Xianchen Gong, Jilong Wang, Shengbo Jin, Hao Xu✉, Peng Wu✉

### Author information

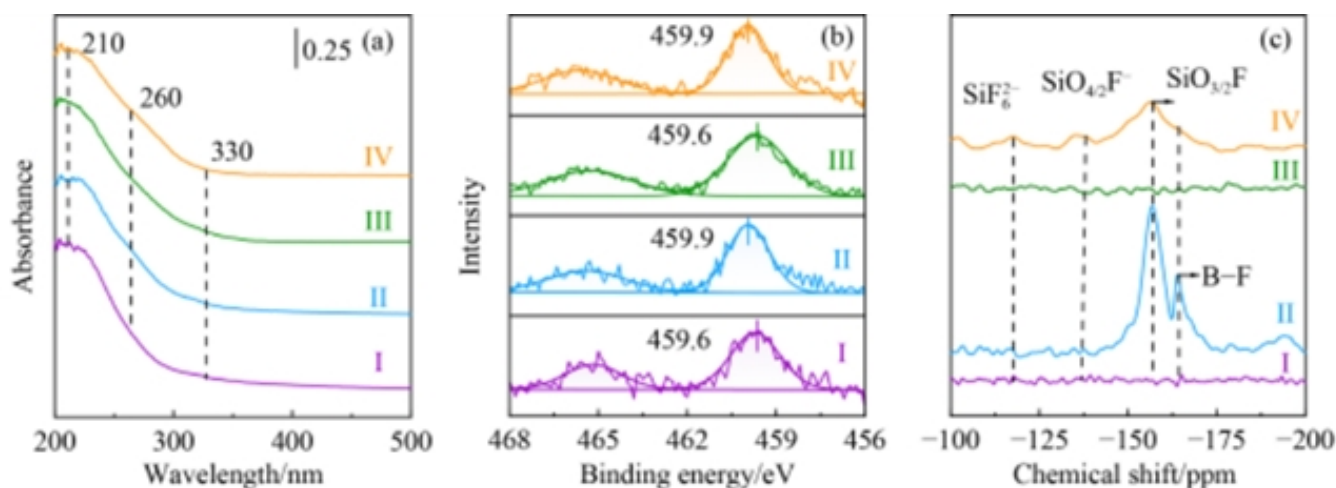
State Key Laboratory of Petroleum Molecular & Process Engineering, Shanghai Key Laboratory of Green Chemistry and Chemical Processes, School of Chemistry and Molecular Engineering, East China Normal University, Shanghai 200062, China

h xu@chem.ecnu.edu.cn

p wu@chem.ecnu.edu.cn

华东师范大学吴鹏教授和徐浩研究员等在《化学科学与工程前沿》（英文）发表了题为Post-treatment of Ti-MWW zeolite with potassium fluoride for propylene epoxidation的研究论文，提出了一种基于氟化钾后处理的协同改性策略。

本研究以无粘结剂Ti-MWW沸石（Bf-Ti-MWW）为研究对象，借助二次结晶工艺，成功解决了粘结剂对该催化剂微孔堵塞的问题。为了避免新生成的硅羟基位点成为副反应的活性中心，采用353 K的氟化钾水溶液对催化剂进行后处理，通过钾离子交换中和硅羟基的酸性，同时氟离子嵌入沸石骨架形成 $\text{SiO}_3/2\text{F}$ 结构。X射线光电能谱分析表明，改性后钛活性中心的Ti 2p<sub>3/2</sub>结合能从459.6 eV增至459.9 eV，其电正性的增强促进了 $\text{H}_2\text{O}_2$ 的吸附与活化。红外光谱（FTIR）数据显示，处理后催化剂内部（3720  $\text{cm}^{-1}$ ）和外部（3745  $\text{cm}^{-1}$ ）硅羟基的信号强度分别减弱了62%和78%，有效抑制了酸性位点引发的副反应。



(I) Bf-Ti-MWW、(II) Bf-Ti-MWW-KF、(III) Bf-Ti-MWW-KHCO<sub>3</sub>和 (IV) Bf-Ti-MWW-NH<sub>4</sub>F的 (a) 紫外-可见光谱, (b) Ti 2p X射线光电能谱, (c)  $^{19}\text{F}$ 魔角旋转核磁共振光谱

在间歇式反应体系中，改性后的Bf-Ti-MWW-KF催化剂性能显著提升： $\text{H}_2\text{O}_2$ 转化率由52.5%提升至64.7%，PO产率从48.8%增长至60.1%， $\text{H}_2\text{O}$

---

2利用率达到94%。水吸附实验进一步表明，改性材料的吸水量减少了37%，疏水性的增强使PO水解转化率在12小时内从38.2%降至12.5%。连续固定床测试中，催化剂在333 K下稳定运行2700小时，PO产率维持在 $590 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ ，展现出长期的稳定性。失活再生实验证实，活性下降主要源于氟物种的流失，经823 K煅烧后性能可恢复至初始水平。

通过多层次表征，本研究揭示了钾、氟的协同作用机制。 $^{19}\text{F}$ 固体核磁共振谱图显示，改性后仅在 $-155 \text{ ppm}$ 处出现活性促进型 $\text{SiO}_3/2\text{F}$ 特征峰，避免了传统氟化铵处理可能生成的 $\text{SiO}_4/2\text{F}^-$ 和 $\text{SiF}_6^{2-}$ 等抑制活性物种。吡啶吸附FTIR分析表明，处理后催化剂的布朗斯特酸量减少82%，从根源上阻断了PO水解路径。相较于单一离子改性策略，该研究通过电子效应强化与酸性位点消除的双重调控，在提升钛活性中心本征活性的同时维持了催化剂机械强度与孔道结构的完整。

## 引用信息

Xintong Li, Xianchen Gong, Jilong Wang, Shengbo Jin, Hao Xu, Peng Wu. Post-treatment of Ti-MWW zeolite with potassium fluoride for propylene epoxidation. *Front. Chem. Sci. Eng.*, 2024, 18(8): 88

## 本文来自

Special Issue—Catalysis for a sustainable future

扫描二维码 查看原文

原文链接：

<https://journal.hep.com.cn/fcse/EN/10.1007/s11705-024-2441-1>

## 《前沿》系列英文学术期刊

由教育部主管、高等教育出版社主办的《前沿》（Frontiers）系列英文学术期刊，于2006年正式创刊，以网络版和印刷版向全球发行。系列期刊包括基础科学、生命科学、工程技术和人文社会科学四个主题，是我国覆盖学科最广泛的英文学术期刊群，其中12种被SCI收录，其他也被A&HCI、Ei、MEDLINE或相应学科国际权威检索系统收录，具有一定的国际学术影响力。系列期刊采用在线优先出版方式，保证文章以最快速度发表。

中国学术前沿期刊网

<http://journal.hep.com.cn>



特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费等事宜，请与我们接洽。

来源：Frontiers of Chemical Science and Engineering

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发