

L06

銀担持触媒によるエチレンのエポキシ化反応に対する担体効果

(徳島大工) 中村 翔太 (徳島大院先端教育部) (学) 小川 史郎
 (徳島大院 STS 研)(正)中川 敬三・(正)外輪 健一郎・(正)杉山 茂*
 (富田製薬) (正)小西 征則・(正)大久保 彰

1. 緒言

材料の高機能化によって PET やポリカーボネートといった高機能性プラスチック材料の需要は、今後も世界規模で高まりが続くと予想されている。このためにこれらの原料となるエチレンオキシド (EO) のより効率的な生成プロセスが望まれている。現在、工業的な EO 生成プロセスには銀担持アルミナ系触媒を用いたエチレンの直接酸化が用いられている。

ナトリウム超イオン伝導体 (Na Super Ionic Conductor: $\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{P}_{3-x}\text{O}_{12}$ ($x=0-3$): NASICON) にイオン交換で銀を導入した NASICON 型構造の銀イオン担持リン酸ジルコニウム系化合物への電子線照射により、直径が数～数 10 nm、アスペクト比 2000 以上の銀ナノワイヤが連続的に形成される現象が報告されている¹⁾。銀ナノワイヤは電子デバイスや触媒分野への利用が期待されている。

そこで我々はこの銀ナノワイヤをエチレン直接酸化触媒に用いることを計画した。本研究ではリン酸ジルコニウム系担体が銀の活性に及ぼす影響を、銀ナノワイヤを導入する事前調査として行い、常法で調製した銀担体触媒と比較し担体効果について検討した。

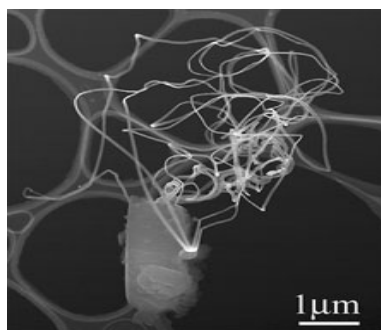


Fig. 1 銀ナノワイヤの走査型電子顕微鏡写真

2. 実験

今回、用いた担体は γ -アルミナ、リン酸水素ジルコニウム、NASICON である。銀担持触媒はイオン交換法と錯体形成法²⁾を用いて調製を行った。触媒の構造解析は XRD で分析した。

触媒活性試験には常圧固定床流通式反応装置を用い、触媒量 0.50g、反応温度 350 °C、 $\text{C}_2\text{H}_4 : \text{O}_2 : \text{He} = 5 \text{ ml/min} : 4 \text{ ml/min} : 21 \text{ ml/min}$ の原料ガスを基準条件として用いて検討した。

3. 結果と考察

3.1. 錯体形成法による担体効果の検証

錯体形成法にて調製した $\text{Ag-NaCl} / \gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ag-NaCl} / \text{Zr}(\text{HPO}_4)_2$ 、 $\text{Ag-NaCl} / \text{NASICON}$ を用いて検討を行った。XRD よりいずれの触媒も銀金属に起因するピークを確認できた。しかし、それぞれ触媒の担体に起因するピークは確認できなかった。活性は γ -アルミナ担体触媒が最も高いエチレン変化率を示し、リン酸水素ジルコニウム担体触媒が最も高い EO 選択率を示した。そして、NASICON 担体触媒はいずれも最も低い値を示した。

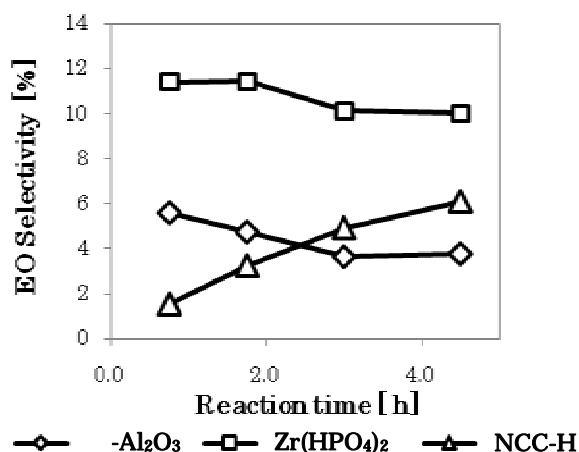


Fig. 2 異なった担体触媒による EO 選択率

3.2. 銀導入法による触媒の検証

錯体形成法とイオン交換法で調製したそれぞれの NASICON 型リン酸ジルコニウム系触媒による銀導入法による検討を行った。XRD よりイオン交換法で調製した触媒はいずれも銀に起因するピークは確認出来なかった。また銀導入量 5 wt% の触媒では担体の NASICON に起因するピークを確認できたが、30 wt% のものでは異なるピークを確認した。活性はエチレン変化率、EO 選択率ともにほとんど活性を示さなかった。

4. 参考文献

- 1) 槇田 洋二, AIST Today 2002.8 Vol.2-08
- 2) J. L. Juan, J. Bravo-Sua'ez, M. Haruta, S. T. Oyama, Appl. Catal. A: **302** (2006) 283