ナノワイヤー型銀触媒によるエチレンのエポキシ化に関する研究（II）

エチレン系誘導品である高機能製のプラスチック材料の需要が、世界規模で伸びてきている。このため、これらの出発原料であるエチレンオキシドのより効率的な生産が求められている。近年、エチレンオキシドの工業的生産には、エチレンの直接酸化が用いられており、この反応には銀触媒が使われている。本研究では、最近注目を浴びている Na Superionic Conductor（NASICON）を担体として用いた銀ナノワイヤー触媒を調製し、エチレンの直接酸化によるエチレンオキシドの生成を検討した。

電子線照射 Ag 型 NASICON(TEM-Ag/NASICON)および電子線照射前にアルミナ修飾させた触媒(Al-TEM-Ag/NASICON)を調製した。触媒活性試験には常圧固定床流通式反応装置を用い、反応基準条件として触媒量 0.50 g、反応温度 300-530℃において、流量が O_2:C_2H_4=4 mL:5 mL、総流量が 30 mL となるように原料ガスをヘリウム希釈し、試験した。

まず、TEM-Ag/NASICON 触媒において、反応温度を 300-530℃に変化させ、活性試験を行った。エチレンの変化率は、反応温度の上昇に伴い増加し、530℃で急激に増加した。また、エチレンオキシドの選択率は、500℃で急激に増加し、500℃と 530℃の選択率を比較すると、ほぼ変化していないことが確認できた。

Table 1 は、TEM-Ag/NASICON および Al-TEM-Ag/NASICON を用い、活性試験を行った結果である。エチレンの変化率は、アルミナ修飾させることで大幅に増加した。これに対し、エチレンオキシドの選択率は、大幅に減少した。また、一酸化炭素の選択率は減少、二酸化炭素の選択率は増加した。このことから、アルミナ修飾させた触媒の方が、完全酸化がより進行したと考えられる。

Table 1.　Catalytic activity on TEM-Ag/NASICON and Al-TEM-Ag/NASICON

Catalyst	Calcination Temp./℃	Time on Stream/h	Selectivity/%			Ethylene Conv./%
			CO	CO_2	C_2H_4O	
TEM-Ag/NASICON		0.75	43.8	52.3	4.0	0.83
		4.5	37.4	57.2	5.4	0.85
Al-TEM-Ag/NASICON	600℃	0.75	25.6	73.4	0.62	4.39
		4.5	15.7	84.3	0	3.37
	1200℃	0.75	15.3	84.7	0	23.6
		4.5	25.1	74.9	0	11.8