

H₂の気相酸素を用いた接触酸化による過酸化水素合成

(九州大学大学院工学研究院応用化学部門)○野村要平・畑佑以子
(九州大学大学院工学研究院応用化学部門・未来化学創造センター)松本広重・石原達己

過酸化水素は漂白剤、殺菌剤として工業的に大量に用いられており、環境負荷の高い塩素系化合物の代替が進んでいる。また、全化学プロセスの30%を占める酸化反応においても、過酸化水素は副生成物が水のみであるため、グリーンケミストリーの観点からも環境に優しい次世代の酸化剤として注目を集めている。

現在、過酸化水素はアントラキノン法により工業的に合成されているが、多段階の合成プロセスであるため、エネルギー利用効率が低く、過酸化水素の低価格化を困難にしている。さらに、この方法は大規模な装置を用いて大量生産する場合においてのみ適するため、一度の使用量が少ない場合には濃縮した過酸化水素の輸送や貯蔵を必要とする。しかし、高濃度の過酸化水素は分解しやすく、爆発の危険性があるため、輸送や貯蔵を必要としない小規模で効率の高い新規合成プロセスを必要としている。

本研究では、H₂をO₂で直接酸化し、温和な条件のもと、一段階で高選択的に過酸化水素を合成する触媒を検討してきた。これまで、触媒の担持材として、SiO₂やTiO₂等を用いた研究を行い、最適化の結果、ルチル型TiO₂を担体とすると高い選択率と反応速度を示すことが明らかになった。さらに、反応速度の向上と高い蓄積量を目指し、溶液中で高分散可能なコロイダルAu-Pdを用いて合成反応を行ったところ、ルチル型TiO₂の約1.5倍の反応速度を得た。また、Fig.1に示すように、コロイド保護剤(PVP)の量を増加させることにより、10 hrで約260 mmol/L (0.9 wt%) という短時間で大きな蓄積量を達成した。調製したコロイダルAu-PdをTEM (電子顕微鏡) により観察した結果、コロイダル粒子の粒径は約10~20 nmであった。また、XPSによる分析からコア・シェル型の構造を有し、表面にはAuの濃度が高いことが分かった。ナノコロイドは高い表面積を有することから、反応活性サイトが増加し、反応速度の向上につながったものと推察される。

以上より、AuとPdからなるナノコロイドはH₂のO₂酸化による新しい過酸化水素合成触媒として高い活性を有するとともに選択性の高いことが分かった。H₂とO₂からのH₂O₂直接合成法はH₂O₂の生産性が高く、新しいH₂O₂の合成法になることが期待される。

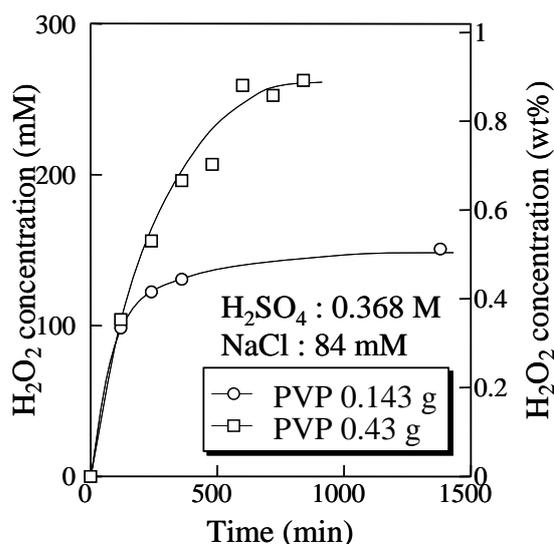


Fig.1. H₂O₂ formation rate at different PVP protective reagent amount.