

【課題番号】 3RF-1903

【研究課題名】難分解性化合物の高度分解処理が可能な再生型不均一系フェントン触媒システムの開発

【研究期間】 2019 年度～2021 年度

【研究代表者（所属機関）】 福 康二郎（関西大学）

研究の全体概要

産業用水・排水処理において生物分解が困難な難分解性化合物の処理が問題となっている。従来の処理方法としては均一系触媒を利用したフェントン反応がある。これは硫酸第一鉄を廃液に溶解させ、過酸化水素（ H_2O_2 ）を加えることで強力な酸化力を有するヒドロキシルラジカル（ $\cdot\text{OH}$ ）を形成できるプロセス（式(1), (2)）であり、このラジカルにより難分解性化合物を酸化分解する方法である。



ところがこの方法には次に述べるような問題点を有している。

1. 「均一系触媒」であるため、反応後の廃液から残触媒や副生成物を分離する複雑な工程が必要となる。
2. Fe^{2+} と H_2O_2 によるフェントン反応だけでは十分な分解率を達成できない。
3. Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元再生する式(2)の反応が、式(1)に比べると極めて起こりにくく、再利用が困難な水酸化鉄（ $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ）スラッジが副生成物として生成する。
4. 廃液中で鉄イオンを安定化させるため、処理液は酸性（ $\text{pH} \leq 3$ ）に保つ必要があり、排水処理設備の長期使用のためには、耐酸性設備の設計およびメンテナンスに多大なコスト・時間を要する。

本研究では従来の均一系フェントン反応の問題点に対し、以下の方針で解決すべく開発を行う。

① 設備とプロセスの簡素化および長寿命化 ⇒ Fe系層状複水酸化物（Fe(II)-LDH）触媒の開発

鉄系触媒として層状複水酸化物（Layered Double Hydroxide : LDH）を用いる。LDH は不均一系固体触媒として使用ができ、鉄触媒は LDH 中に固定化されているため $\text{Fe}(\text{OH})_3$ スラッジが発生しない。また反応後の廃液に残った触媒や副生成物を分離する複雑な工程が不要となる。廃液の pH を酸性（ $\text{pH} \leq 3$ ）に保つ必要もなく、中性（ $\text{pH}=6\sim 7$ ）付近でのフェントン反応が可能となる。

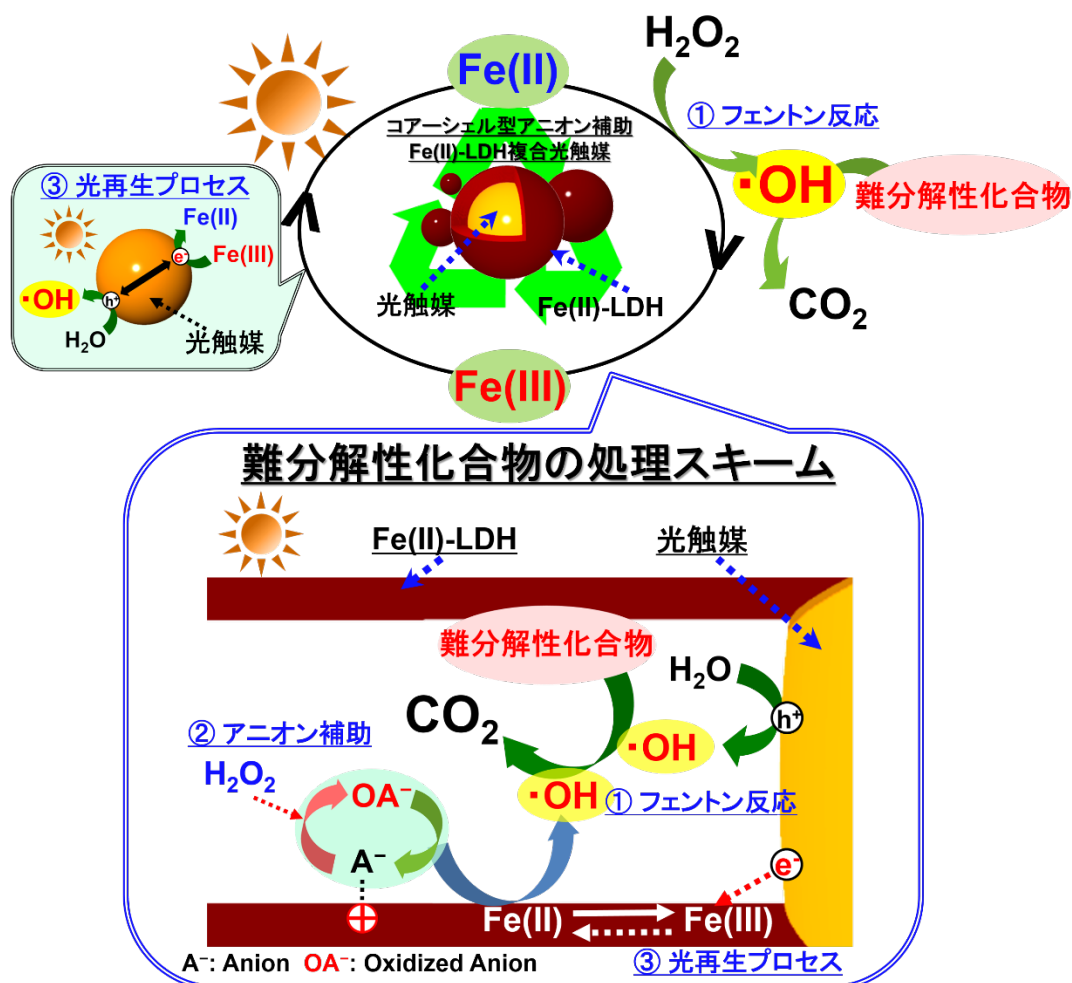
② 分解性能の向上 ⇒ アニオン補助 Fe(II)-LDH 触媒の開発

H_2O_2 を用いて直接フェントン反応を進行させるよりも、 H_2O_2 と無機アニオンを反応させることで生成し得る過酸化物を利用したフェントン反応が高い有機酸化性能を示すという結果を既に得ている。上記の LDH は、静電的相互作用により無機アニオンを LDH 層間に固定化することも可能であり、最適な無機アニオンを導入することで更に高い酸化分解性能が期待できる。

③ $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$ への還元再生反応の促進 ⇒ 光触媒とアニオン補助 Fe(II)-LDH 触媒の複合化

反応が起こりにくい $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$ への還元反応を促進する手段として光触媒を活用する。光触媒上で発生する励起電子（ e^- ）によって Fe^{3+} を還元し Fe^{2+} とし、同時に発生する正孔（ h^+ ）では H_2O を酸化して $\cdot\text{OH}$ を製造する。本研究では触媒の基本構造である Fe(II)-LDH 触媒と光触媒をコアシェル型で複合化（コアシェル型アニオン補助 Fe(II)-LDH 複合光触媒）することを検討する。

フェントン反応による難分解性化合物の分解無害化



従来法の問題点

1. 均一系のため触媒分離が困難
2. 分解性能が不十分
3. Fe³⁺からFe²⁺への再生が困難
4. 反応液がpH≦3 (酸性)

解決法

- ① Fe(II)-LDHの開発 (上記①)
- ② アニオン補助による性能向上 (上記②)
- ③ 光触媒との複合化 (上記③)
- 不均一系のため中性で利用可能 (上記①～③)