

【課題番号】 3RF-2303

【研究課題名】 有機廃棄物の持続可能な高度分解処理を実現する光自己再生型不均一系フェントン触媒の開発

【研究期間】 2023年度（令和5年度）～ 2025年度（令和7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

【背景】 産業用水・排水中に含まれる有機廃棄物の処理方法の一つに、フェントン反応がある。2価の鉄イオン (Fe^{2+}) 触媒と過酸化水素 (H_2O_2) を反応させることで、ヒドロキシルラジカル ($\cdot\text{OH}$) を生成するプロセス (式(1), (2)) であり、 $\cdot\text{OH}$ の強力な酸化力で有機化合物を酸化分解する。



フェントン反応は古くから利用されている処理法であるが、5つの深刻な問題点がある。

1. 均一系触媒（鉄イオン）を利用するため、反応後に残触媒を分離する工程が必要となる。
2. 処理液は酸性 ($\text{pH} \leq 3$) に保つ必要があり、耐酸性設備に多大なコストを要する。
3. 酸化分解効率（完全分解生成物である二酸化炭素 (CO_2) への転化率）が十分ではない。
4. Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元再生する反応（式(2)）が起こりにくく、水酸化鉄 ($\text{Fe}(\text{OH})_3$) スラッジが産業廃棄物として大量に発生する。
5. 連続的に $\cdot\text{OH}$ を生成するには、高価な H_2O_2 が多量に必要となり、処理コストが膨大になる。

申請者は、問題点1~4の解決を目指して、層状複水酸化物 (Layered Double Hydroxide : LDH) に着目し、 Fe^{2+} とアルミニウムイオン (Al^{3+}) および無機アニオン (A^-) から成る LDH ($\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}\text{-LDH}$) が、光照射下で高いフェントン触媒性能を示すことを見出してきた（課題番号：3RF-1903）。

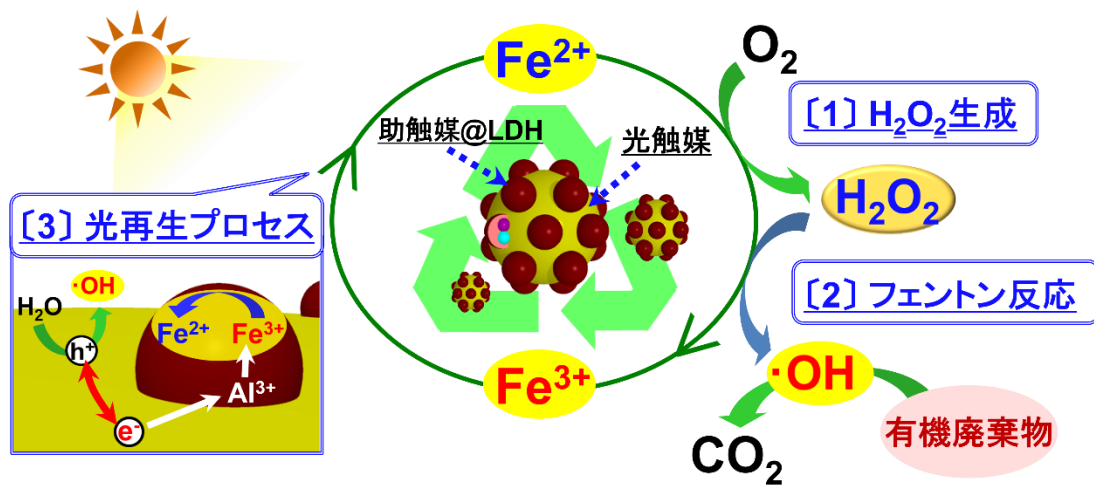
しかしながら、 Fe^{2+} から Fe^{3+} への価数変化によって、LDH 構造の崩壊に伴う鉄イオンの溶出も確認されている。従来の処理法に代わる実用化技術にするためには、触媒安定性が十分ではなく、高価な H_2O_2 を多量に要する問題点5も未解決のままである。

【目的】 有機廃棄物を適正に処理できる持続可能な触媒システムの実用化に向けた基盤技術として、上記課題の解決を目的とする。 H_2O_2 の添加無しで有機化合物を酸化分解できる触媒性能と、鉄イオンの溶出を限りなく抑制できる安定性を両立した不均一系フェントン触媒システムの開発を目指す。

〈問題点1~4の改善方針：高い安定性を保有する鉄系層状複水酸化物の開発〉 $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}\text{-LDH}$ への価数調整用2価金属イオン (M^{2+}) の導入を検討する ($\text{M}^{2+}\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}\text{-LDH}$)。価数調整用 M^{2+} を導入することで、 Fe^{2+} から Fe^{3+} への価数変化に伴う LDH 構造の崩壊を防止し、触媒の安定性向上を目指す。高安定性不均一系フェントン触媒システムが実現すれば、スラッジの発生を限りなく抑制しながら、反応後の残触媒を分離する複雑な工程も不要となる。また、中性付近でのフェントン反応も可能となる。

〈問題点3~5の改善方針： $\text{M}^{2+}\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}\text{-LDH}$ 触媒と助触媒担持光触媒の複合化〉 光触媒上で発生する励起電子 (e^-) によって「 O_2 からの H_2O_2 生成」を行い、これを「LDH 触媒上でのフェントン反応」に利用すると共に、「LDH 自身の光触媒作用による Fe^{3+} から Fe^{2+} への還元再生のアシスト」を行う。この際、これらの反応をそれぞれで選択的に進行させることが可能な金属助触媒を光触媒上に導入する。これらの機能を効果的に発現させるため、LDH 触媒と金属助触媒はコアシェル型での複合化（助触媒@LDH 複合型光触媒）を目指す。

助触媒@LDH複合型光触媒 (LDH: $M^{2+}Fe^{2+}Al^{3+}$ -LDH)



〈従来法の問題点〉	〈改善方針〉
1. 均一系のため触媒分離が困難	不均一系 $M^{2+}Fe^{2+}Al^{3+}$ -LDH触媒の開発 (上記[2])
2. 反応液がpH \leq 3 (酸性)	不均一系のため中性で利用可能 (上記[2])
3. 分解性能が不十分	LDH触媒と光再生プロセスの融合 (上記[2]~[3])
4. Fe^{3+} から Fe^{2+} への再生が困難	高安定性LDH触媒と光再生プロセスの融合 (上記[3])
5. 高価な H_2O_2 が多量に必要	光触媒反応による O_2 からの H_2O_2 生成の融合 (上記[1])