

H₂の気相酸素を用いた接触酸化による過酸化水素合成 (12)

コロイドの調製条件の影響

(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、今後の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、H₂とO₂から直接H₂O₂を得ることのできる直接法の実用化は、反応速度が大きく、小型の装置でも十分な生産能力を達成できることから、化学分野における夢の反応の1つとなっている。

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いる。これまで、シュウ酸を還元剤として加熱還流して調製したコロイダルPd-Au触媒がルチル型TiO₂を担体として調製したPd-Au触媒の約1.5倍の反応速度を示すことが明らかになった。これは、Fig.1に示すように、10~20 nmにコロイドの粒径が制御されているためであると推察される。さらに、高い反応速度の向上を目指し、コロイダルPd-Au触媒の調製条件の最適化を行ったところ、ヒドラジンを還元剤として液相還元を行い調製したコロイダルAu-Pdを用いることで

H₂O₂生成速度 80 mM/h、**収率 6.8 %を達成**し、シュウ酸を還元剤として調製したコロイダルPd-Auの約1.5倍の生成速度および収率が得られた。ヒドラジンは高い還元力を有するため、コロイドの粒径が小さくなり、高いH₂O₂生成速度を達成したものと考えられる。また、Fig.2に示すように過酸化水素生成活性はコロイド調製時のAu-Pd比に大きく依存し、Pd濃度が85 mol%で**ほぼ100 %の選択率を達成した**。さらに、爆発下限外でのH₂O₂合成についても検討し、H₂分圧2.5 %においてH₂の転化率が向上したことからH₂O₂収率が大きく向上でき、**H₂O₂収率 29 %**という高い値に到達することがわかった。

以上より、ヒドラジンをを用いる液相還元により調製したAuとPdからなる構造を制御したナノコロイドは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を明らかにした。

以上より、ヒドラジンをを用いる液相還元により調製したAuとPdからなる構造を制御したナノコロイドは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を明らかにした。

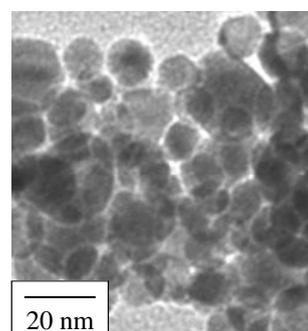


Fig.1. TEM image of Pd - Au nano colloid.

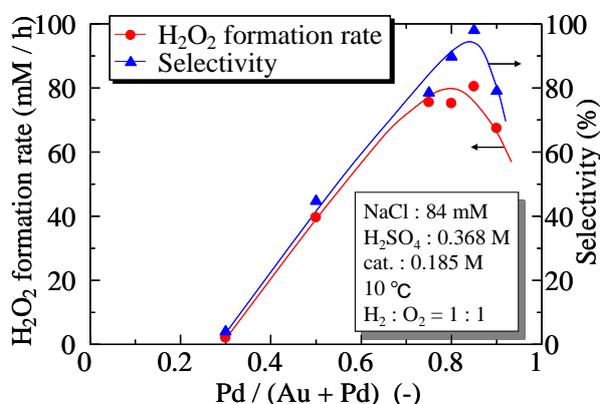


Fig.2. Effect of Pd / (Au + Pd) in Pd-Au colloid reduced by hydrazine.