

水中有機汚染物質の高度分解処理を目指した鉄系層状複水酸化物触媒の開発

(関西大環境都市工¹⁾) ○福 康二郎¹・轟 真誠¹・池永 直樹¹

Development of Iron-typed Layered Double Hydroxide Catalyst for Advanced Degradation Treatment of Organic Pollutants in Water (¹Faculty of Environmental and Urban Engineering, Kansai University) ○Kojiro Fuku,¹ Masanobu Todoroki,¹ Naoki Ikenaga¹

Fenton reaction has been conventionally known as a promising treatment method of organic pollutants in water using Fe²⁺ catalyst. In this study, we focused on layered double hydroxide (Fe²⁺Al³⁺-LDH) composed of Fe²⁺ and Al³⁺ as heterogeneous Fenton catalyst. The Fe²⁺Al³⁺-LDH exhibited excellent oxidative degradation performance of phenol as a model compound of organic pollutants under visible-light irradiation by photo-induced MMCT effect.

Keywords : Fenton Reaction; Iron-typed Layered Double Hydroxide; Heterogeneous Catalyst; Organic Pollutant; Oxidative Degradation Treatment

【緒言】 水中有機汚染物質を処理する方法に、鉄イオン (Fe²⁺) 触媒を用いた Fenton 反応 (式(1), (2)) がある。しかしながらこの方法には、次の深刻な問題点がある。



- 〔 [1] 「均一系」触媒を利用するため、反応後の残触媒の分離と回収が困難。
[2] Fe³⁺を Fe²⁺に還元再生する式(2)の反応が、極めて起こりにくい。 〕

本研究では、「不均一系」Fenton 触媒の開発を目指し、鉄系の層状複水酸化物 (LDH) に着目した。LDH は、構造内に固定化された 2 価と 3 価の金属イオン間で、光によって誘起される金属間電子遷移 (MMCT) を発現する特徴がある。今回は、Fe²⁺と Al³⁺から成る LDH (Fe²⁺Al³⁺-LDH) を触媒に用いた Fenton 反応への応用について検討した¹⁾。また、Fenton 性能に及ぼす光誘起 MMCT 効果の影響についても調査した。

【実験】 触媒調製: FeCl₂ と AlCl₃ の混合水溶液を NaOH 水溶液で pH 10 に調整後、110°C で 24 h 水熱処理することにより調製した。酸化分解反応: Fe²⁺Al³⁺-LDH を含む水懸濁液中に、モデル基質としてフェノール (20 μmol) と H₂O₂ (600 μmol) を加え、30°C で攪拌しながら、Xe ランプを用いて可視光 (λ > 420 nm) を照射した。

【結果】 無触媒や 2 価の酸化鉄 (FeO) を用いた系では、フェノールの酸化分解性能をほとんど示さなかったのに対し、Fe²⁺Al³⁺-LDH では、暗所下でもほぼ 100% のフェノール転化率を示し、完全分解生成物である CO₂ も確認された (Table 1)。また可視光照射下では、その分解性能はさらに 2 倍程度向上することがわかった。反応前後の XPS 分析から表面 Fe²⁺/Fe³⁺比も算出した。式(1)の Fenton 反応が進行することにより、反応前に比べ、反応後の Fe²⁺/Fe³⁺比の低下が確認された。可視光照射下の反応後では、暗所下よりもその比は回復しており、光照射による還元再生反応 (式(2)) の促進が確認された。LDH 上で光誘起 MMCT 由来の Fe²⁺への光自己再生機能が発現することにより、Fenton 触媒反応サイクルが向上したと考えられる (Fig. 1)。

1) K. Fuku, *et al.*, *Chem. Asian J.*, **2021**, *16*, 1887.

Table 1 Fenton reaction properties on Fe²⁺Al³⁺-LDH under light irradiation.

| Catalyst | Visible-light irradiation | Conversion to CO ₂ (%) | Fe ²⁺ /Fe ³⁺ (from XPS) |
|--|---------------------------|-----------------------------------|---|
| Without | × | 0.2 | --- |
| FeO | × | 0.2 | --- |
| Fe ²⁺ Al ³⁺ -LDH | × | 33.7 | 0.24 |
| | ○ | 68.0 | 0.34 |
| Fe ²⁺ Al ³⁺ -LDH before reaction | --- | --- | 0.47 |

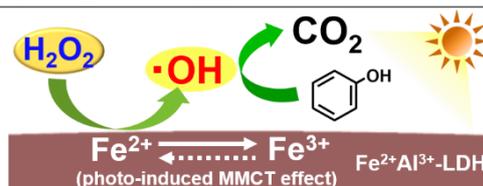


Fig. 1 Proposed mechanism of Fenton reaction on Fe²⁺Al³⁺-LDH.