

FeAl-LDH 触媒を用いたベンゼンからフェノールへの直接水酸化反応

(関西大院理工¹・関西大環境都市工²) ○正門 拓己¹・福 康二郎²・池永 直樹²
 Direct Hydroxylation Reaction from Benzene to Phenol Using FeAl-LDH Catalyst (¹Graduate School of Science and Engineering, Kansai University, ²Faculty of Environmental and Urban Engineering, Kansai University) ○Takumi Masakado,¹ Kojiro Fuku,² Naoki Ikenaga²

Direct phenol synthesis from benzene in one step has the problem that it is difficult to oxidize effectively benzene. In this study, we focused on the benzene oxidation by Fenton reaction using $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH loaded on various supports as catalyst and H_2O_2 as an oxidant. The FeAl-LDH loaded on SiO_2 exhibited excellent performance for benzene oxidation, and the selectivity reached *ca.* 7 times compared with the FeAl-LDH bare.

Keywords : Layered Double Hydroxide; Fenton Reaction; Benzene; Phenol; Fe

【緒言】化学産業で合成樹脂、染料、医薬品等の重要な原料の一つとして用いられるフェノールは、主にクメン法によって合成されている。しかしながらこの方法は、多段階プロセスであるため低エネルギー効率や副生成物が多い等のいくつかの問題点がある。そこで、より効率的で環境に優しい一段階でのフェノールの直接合成が望まれており、その方法の一つに Fe^{2+} 触媒と、 H_2O_2 を酸化剤に使用した Fenton 反応がある¹⁾。本研究では、Fenton 性能を示すことが知られている $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH²⁾ を、各種担体上に担持した触媒を用いて、ベンゼンからフェノールへの直接水酸化反応を試みた。

【実験方法】触媒調製： $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH は、原料に $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 10 mmol と $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 5 mmol を用いて、水熱合成法で調製した。 $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH の各種担体上への担持は、 $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH 調製時に各種担体を 600 mg 加えて、同様の方法で調製した。触媒反応：試験管に触媒 100 mg、アセトニトリル 30 mL とベンゼン 11.3 mmol を加え、65 °C で加熱した。 H_2O_2 20 mmol を加えた後、Xe ランプを用いて可視光線 ($\lambda > 420 \text{ nm}$) を 2 h 照射した。ベンゼンとフェノールの定量は GC-FID を用いて行った。

【結果】 $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH を各種担体上に担持した触媒を用いて、ベンゼン酸化反応を行った結果を Fig. 1 に示す。今回試みた全ての触媒において、フェノールの生成が確認された。また、各担体上に担持した $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH は、いずれの場合も $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH 単独 (Without) より高いフェノール生成活性を示した。特に、 SiO_2 上に担持した場合に、最も高いフェノール選択率を示し、Without と比べて約 7 倍のフェノール選択率を示した。XRD 測定の結果から、 SiO_2 上に担持した $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH は最も小さい結晶子径を示した。 SiO_2 は、 $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH の微粒子化に大きく寄与し、微粒子な $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH は高いベンゼン酸化性能とフェノール酸化の抑制に寄与することが示唆された。

- 1) A. Mancuso, *et al.*, *Catalyst*, **2020**, 10, 1424.
- 2) K. Fuku, *et al.*, *Chem. Asian J.*, **2021**, 16, 1887.

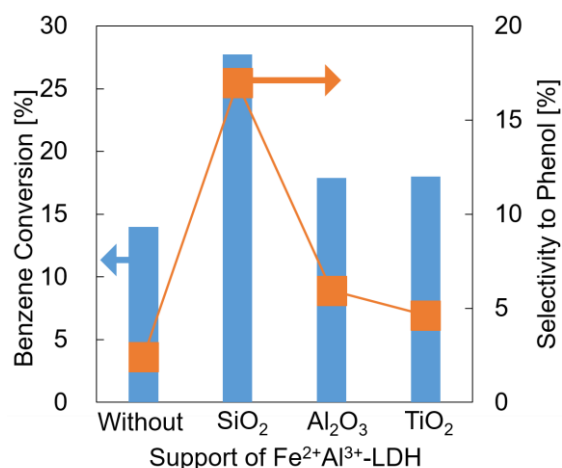


Fig. 1 Comparison of benzene conversion and selectivity to phenol on $\text{Fe}^{2+}\text{Al}^{3+}$ -LDH loaded on various supports.