

レゾルシノール樹脂光触媒を用いた過酸化水素合成における尿素の添加効果

(阪大院基礎工) ○地黄 将弘・白石 康浩・平井 隆之

Effect of urea on the photocatalytic generation of hydrogen peroxide on resorcinol-formaldehyde resins (Graduate School of Engineering Science, Osaka University) ○JIO, Masahiro; SHIRAISHI, Yasuhiro; HIRAI, Takayuki

H_2O_2 has received increasing attention as a new liquid fuel. We have reported that the resorcinol-formaldehyde (RF) resin photocatalysts successfully produces H_2O_2 from water and O_2 under visible light irradiation.^[1,2] However, the generated H_2O_2 undergoes subsequent decomposition by the photocatalytic oxidation and reduction. It is well known that H_2O_2 forms a stable urea-hydrogen peroxide (UHP) white solid via an H-bonding interaction. We therefore envisioned the direct synthesis of the UHP solids by adding urea to the above RF photoreaction system. We found that urea behaves as a stabilizer that inhibits the subsequent oxidation and reduction of the formed H_2O_2 via the formation of the UHP complex in the solution, thereby promoting enhanced formation of H_2O_2 . In contrast, addition of excess amounts of urea leads to an adsorption of urea onto the catalyst surface and suppresses the H_2O_2 generation.

Keywords: photocatalysis; hydrogen peroxide; urea; hydrogen bonding

H_2O_2 は新たな液体エネルギーとして注目を集め始めている。我々は、レゾルシノールホルムアルデヒド (RF) 樹脂光触媒により、可視光照射下、水と酸素から H_2O_2 を高効率で生成させることが可能であることを見出しているが^[1,2]生成した H_2O_2 は触媒上で逐次的に酸化および還元される問題がある。尿素と H_2O_2 は水素結合により安定な尿素-過酸化水素付加物 (UHP) 白色固体を形成する。本研究では、RF 樹脂を用いた光触媒反応系に尿素を添加し、UHP 固体を直接合成することを目的としている。実際に尿素存在下で光触媒反応を行った結果 (Figure 1)、少量の尿素の添加により H_2O_2 の生成が促進されることが分かった。ラマン分光ならびに電気化学測定により、尿素と生成した H_2O_2 の相互作用により溶液中で UHP 錯体が生成し、 H_2O_2 の酸化・還元による光触媒分解を抑制することが H_2O_2 生成を促進することが分かった。一方、過剰量の尿素を加えた場合には、尿素が触媒表面に吸着することにより水の酸化と酸素の還元が抑制され、 H_2O_2 生成を抑制することが分かった。

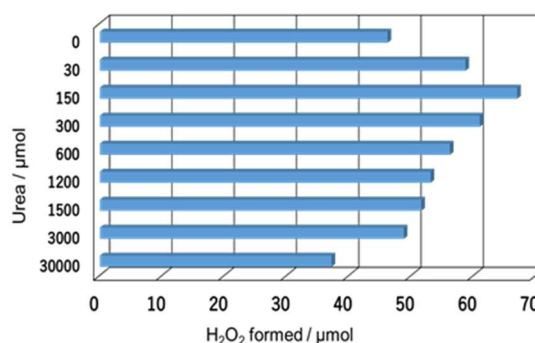


Figure 1 Effect of the amounts of urea on the photocatalytic H_2O_2 generation. [RF resin (50 mg), water (30 mL), O_2 (1 atm), Xe Lamp ($\lambda > 420$ nm), 6 h, 298 K].

[1] Y. Shiraishi, T. Takii, T. Hagi, S. Mori, Y. Kofuji, Y. Kitagawa, S. Tanaka, S. Ichikawa, T. Hirai, *Nat. Mater.* **18**, 985–993 (2019) [2] Y. Shiraishi, T. Hagi, M. Matsumoto, S. Tanaka, S. Ichikawa, T. Hirai, *Commun. Chem.*, **3**, 169 (2020)