

고온 소성한 타이타니아 상에서 발현된 Pd⁴⁺ 이
포함된 Pd/TiO₂의 고 선택적 과산화수소 합성능력(DFT 계산화학)

한근호, 이민우, 이관영[†]

고려대학교

(kylee@korea.ac.kr[†])

친환경적 산화제로 각광받고 있는 과산화수소는 최근 반도체 산업에서 사용량이 지속적으로 증가하고 있고 기존 전통 펄프, 제지산업에도 꾸준히 사용됨에 따라 고수율의 과산화수소 합성 촉매가 필요하다. 특히, 과산화수소 직접합성은 상용 안트라퀴논 합성 대비 친환경적이고 공정이 간단하여 연구인력이 꾸준히 투자되고 있지만, 상용 반응 대비 낮은 과산화수소 수율과 선택도가 걸림돌로 제시된다.

본 연구에서는, 과산화수소 직접합성용 촉매의 활성금속으로 가장 우수한 팔라듐을 사용하되, 담체인 TiO₂의 소성온도를 달리한 후 사용하였다. Pd/TiO₂는 다수 보고된 촉매구성이지만, 고온 (1000도시 이상)에서 의도적으로 소성한 TiO₂를 사용한 사례는 없으며, 이때 팔라듐은 Pd⁴⁺ 라는 특이한 전자상태를 나타내었다. 팔라듐의 전자상태는 과산화수소 선택도에 주된 영향을 미치는 요인으로 알려져 있는 바, Pd⁴⁺ 의 비율에 따른 과산화수소 선택도와 생산성을 비교하였다. Pd⁴⁺ 가 가장 높은 촉매군에서 가장 높은 선택도를 나타내었으며, 기존 보고된 촉매 대비 월등히 높은 수치의 생산성이 얻어졌다.

특성화 분석을 통해, Pd⁴⁺ 가 TiO₂ 담체 상에서 존재하는 형태와 수소화 능력 등의 물성을 측정하였다. 추가적으로 Pd⁴⁺ 가 어떤 메커니즘을 통해 과산화수소 선택도를 높였는지 DFT 계산화학을 통해 증명하고자 한다.