

インジウム担持ゼオライト触媒活性のインジウムドース依存性

Dependence of Catalytic Properties of Indium Implanted Zeolite on the Dose of Indium Injected by Ion Beam Process or Pulse Arc Plasma Process

○吉村智¹, 西本能弘¹, 木内正人^{1,2}, 安田誠¹ (1. 阪大工, 2. 産総研)

°Satoru Yoshimura¹, Yoshihiro Nishimoto¹, Masato Kiuchi^{1,2}, Makoto Yasuda¹ (Osaka Univ.¹, AIST²)

E-mail: yosimura@ppl.eng.osaka-u.ac.jp

近年、インジウム-ケイ素触媒が高いルイス酸活性を有することが発見され、様々な応用への期待が高まっている¹⁻³。一方、ケイ素を含有するゼオライトは、その3次元的な細孔構造が注目されている。インジウムを担持したゼオライトにおいてインジウム-ケイ素触媒能を発現させることができれば、ゼオライトの内部比表面積の大きさから、優れた特性（効率の向上など）の触媒が実現する可能性がある。本研究では、（1）低エネルギーイオンビーム装置（ULVAC）⁴、または（2）アークプラズマ法ナノ粒子形成装置（ADVANCE RIKO, APD-P）⁵を用いてゼオライトにインジウムを担持するという新しい触媒合成法を試みた。ゼオライトには様々な種類のものがあるが、本実験では、化学実験で一般的に広く用いられている Sigma-Aldrich 社の Molecular Sieve 5Åを選んだ。

（1）イオンビーム実験では、ゼオライトをプレスによりターゲットとして利用可能な基板状に加工して用いた。このターゲットを低エネルギー質量分離イオンビーム装置の成膜室に設置し、インジウムイオンを照射した。インジウムイオンエネルギーは 500 eV とした。また、ドース量は(a) 6.7×10^{16} , (b) 1.2×10^{17} , (c) 2.5×10^{17} 個の3通りとした。X線回折や蛍光X線分析により、ゼオライトにインジウムが担持されていることを確認した。しかしながら、この手法で作製したサンプルが触媒として機能する化学反応を見出すことは、現時点ではできていない。

（2）アークプラズマ法ナノ粒子形成装置は、コンデンサに蓄えた電荷をパルス的に瞬時に放電させることによりアークを発生させ、ターゲット材料（今回はインジウム）のナノ粒子ビームを生成するものである。この実験では、ゼオライト粉末をそのままの状態ですぐに容器に入れ、これを攪拌しながらインジウムを照射することにより、均一にインジウムが担持されるように配慮した。放電回数を制御することにより、インジウム担持量の異なった5つのサンプルを作製した。これらのサンプル中のインジウム量は、サンプル重量の 0.15, 0.5, 1.5, 5, 15wt%とした。これらのサンプルの触媒特性を種々の反応について調べたところ、Friedel-Crafts 反応に関して触媒活性を保持していることが分かった。ただし、触媒活性はドース量に強く依存することが分かった。まず、0.15wt%のサンプルでは触媒活性はないことがわかった。インジウム量を増やし、0.5wt%にすると触媒能が発現した（効率 8%）。ドース量をさらに増やすと徐々に触媒効率が増大し、5wt%では 80%に達した。しかしながら、15wt%では 40%に減少した。表面分析で、5wt%はインジウムがサンプルに分散して担持されているが、15wt%ではインジウムが一部に凝集して存在していることがわかった。なお、本研究は科学研究費補助金（15K13406）の支援を受けて行われた。

- 1) Y. Onishi, T. Ito, M. Yasuda, A. Baba : Eur. J. Org. Chem., (2002) 1578.
- 2) T. Saito, M. Yasuda, A. Baba: Synlett, (2005) 1737.
- 3) U. Schneider, S. Kobayashi: Angew. Chem. Int. Ed., **46** (2007) 5909.
- 4) 吉村智, 木内正人, 西本能弘, 安田誠, *et al.* : スマートプロセス学会誌, **4** (2015) 228.
- 5) S. Yoshimura, Y. Nishimoto, M. Kiuchi, M. Yasuda: Chem. Lett., **44** (2015) 1292.