

A122

親水性ゼオライト(Silicalite-1, Mordenite)積層膜による
高濃度有機溶液からの選択脱水

(北大院工) ○(学)佐藤由貴・橋本龍馬・(正)中坂佑太・(正)多湖輝興*・(正)増田隆夫

1. 緒言 現在, 化学プラントにおける液相系混合物の分離・精製の中心は蒸留である。しかし, 蒸留塔での高度精製は設備費の増加や, エネルギー消費量の増大等の問題点がある。そのため高度精製を行う分離法として, パーバレーション(PV)と蒸留を複合させた新規分離システムの開発が期待されている。これまで我々は, 親水性シリカライトナノ結晶積層膜の開発に成功している。さらに, PVによる高濃度アセトン水溶液からの脱水試験において, 従来の緻密なシリカライト膜に比べ高い水の透過速度を得た¹⁾。

モルデナイト型ゼオライトは高い親水性と pH 耐性を示すことから, PV 膜としての利用が検討されている²⁾。当研究室ではこれまでに, ナノサイズのモルデナイト結晶の合成に成功している³⁾。そこで, モルデナイトナノ結晶積層膜を用いることで, 水の高分離性能, 高透過速度の達成が期待される。そこで, 本研究ではモルデナイトナノ結晶積層膜を開発し, PVによる有機物質(アセトン, エタノール, 2-プロパノール)水溶液系からの脱水試験を実施した。

2. 実験方法 先ず, 我々が開発した合成方法²⁾により, モルデナイトナノ結晶(粒子径約 120 nm)を調製した。次に, ナノ結晶を水中に分散させた後, 円筒形アルミナフィルター支持体(外径 11 mm, 長さ 55 mm)を浸し, その内部を吸引することでフィルター外表面にナノ結晶を積層させた。さらに, ナノ結晶層を固着させるため, ナノ結晶層上部にモルデナイト保護層を水熱合成により形成した。なお, 保護層合成時には構造規定剤を使用していない。PV 実験には各種含水極性有機溶液(エタノール, 2-プロパノール, アセトン)を供給液に用い, 温度 60~100 °C, 窒素ガスをキャリアとして実施した。分析にはオンラインのガスクロマトグラフィーを用いた。

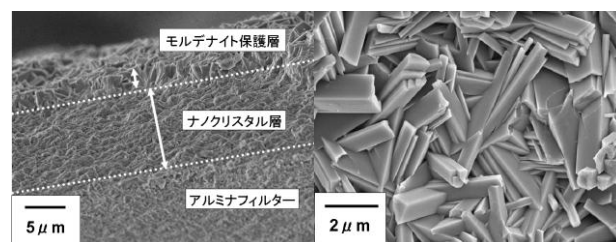
3. 結果と考察 Fig1 はそれぞれ(a)脱水膜の断面, および(b)モルデナイト保護層の表面 SEM 画像である。Fig1 (a)よりアルミナフィルター上にナノ結晶が均一に積層し, その上部に保護層が均一に形成されていることが分かる。また Fig1 (b)より, 保護層表面には多数の結晶間空隙が観察される。さらに, 保護層を形成している結晶は数 μm とナノ結晶に比べて大きく, 保護層はナノ結晶の二次成長によって形成されていると考えられる。このため保護層は分離性能を持たず, ナノ結晶層と保護層の最も緻密化した境界領域が膜の分離性能に影響を及ぼしていると考えられる。

そこでナノ結晶積層厚を変化させ, 積層厚が保護層形成時の二次成長に与える影響を調べた。Fig2に 80°Cにおいて, 水/2-プロパノール溶液を供給液に用いたと

きの PV 試験結果を示す。図より積層厚 4 μm 以下においては, 積層厚増加に伴い水の透過速度は減少し, 分離係数は増加した。一方, 積層厚が 4 μm 以上においては, 水の透過速度, 分離係数共にほぼ等しい値を示した。これより, 境界領域の成長が十分である場合, ナノ結晶積層厚に関わらず膜の分離性能は等しく, 境界領域が膜の脱水特性に大きく関与していることが示唆された。

また, 供給溶液中の溶媒種をエタノール, およびアセトンに変えて PV 試験を行った所, 水の透過速度係数はほぼ一定であったが, 有機物質の透過速度係数は物質の比誘電率が低くなるにつれて減少した。これらの詳細について報告する。

本研究は NEDO 平成 18 年度産業技術研究助成事業(06B44702a)からの助成によって行われた。



(a) 断面 (b) 表面
Fig 1 モルデナイト積層膜の SEM 画像

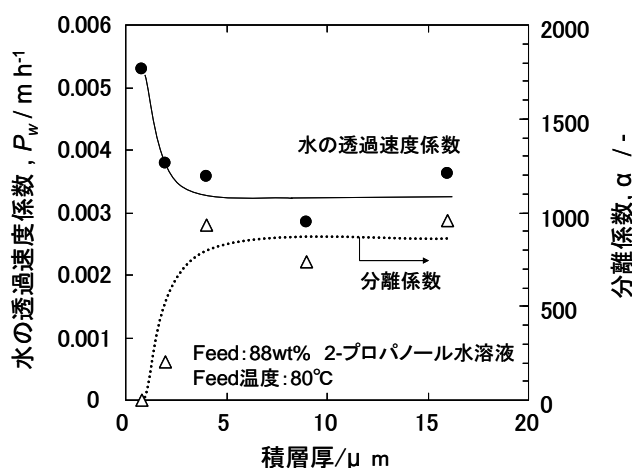


Fig 2 ナノ結晶積層厚が透過、分離性能に与える影響

- 1) T. Tago, et al., *Micropor. Mesopor. Mater.*, **115** (2008) 176
- 2) G. Li, et al., *Sep. Purif. Technol.*, **32** (2003) 199
- 3) T. Tago, et al., *Top. Catal.*, **52** (2009) 865

*多湖輝興 Fax: 011-706-6552, E-mail: tago@eng.hokudai.ac.jp