

Title	加圧ゾル-ゲル処理によるシリカライト膜の結晶粒界制御
Author(s)	林, 明史
Citation	
Issue Date	1998-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2426
Rights	
Description	Supervisor:佐野 庸治 助教授, 材料科学研究科, 修士

加圧ゾル-ゲル処理によるシリカライト膜の結晶粒界制御

林 明史 (佐野研究室)

1. 緒言

ゼオライトの耐熱性、耐薬品性及び分子ふるい作用に着目してゼオライトを分離膜素材に応用しようとする研究が盛んに行われている。当研究室においても、既にシリカライト膜がアルコール/水系及び酢酸/水系の浸透気化分離において高い有機物選択透過性を示すことを見出した。しかし、膜が多結晶体であるため分離は主に結晶粒界を通じて起こっていると考えられる。本研究では、図1に示すようなイメージでシリカライト膜の結晶粒界にゲルを加圧導入することによるシリカライト膜の結晶粒界制御の可能性について検討した。

2. 実験

シリカライト膜は水性ゲル混合溶液 ($\text{SiO}_2 \cdot 0.05\text{Na}_2\text{O} \cdot 0.05\text{TPA}_2\text{O} \cdot 80\text{H}_2\text{O}$) をオートクレーブ中に仕込み、ステンレススチール製多孔質基板 (直径 5cm, 平均細孔径 $5\text{ }\mu\text{m}$) 存在下無撹拌で 170、48 時間水熱処理することにより調製した。得られた膜はテンプレート剤除去のため 400

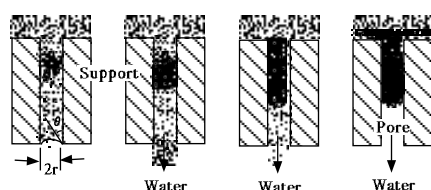


Figure 1 Schematic diagram of pressurized sol-gel coating.

Table 1 Pervaporation separation of ethanol/water mixture using silicalite membrane before and after pressurized sol-gel coating.

Membrane No.	Coating solution	Flux ($\text{kg/m}^2\text{h}$)	EtOH conc. in permeate (vol%)
1	-	0.828	61.2
1	Synthesis mixture	0.509	45.7
2	-	0.621	65.4
2	Sol-gel solution	0.423	48.0

a) Feed ethanol concentration: 5vol%, feed temperature: 30°C

b) 0.1TPABr - SiO_2 - 0.05 Na_2O - 80 H_2O

c) 0.4 $\text{NH}_3(\text{aq})$ - TEOS - 0.8 H_2O - 30EtOH

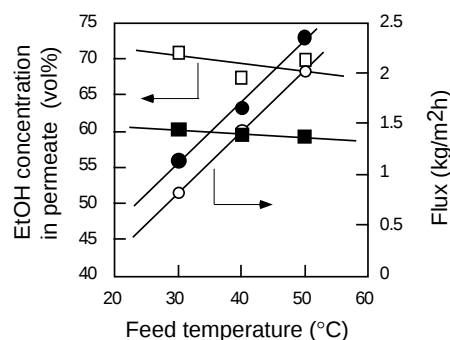


Figure 2 Pervaporation performance of before (■, ●) and after (□, ○) pressurized sol-gel treatment followed by water vapor treatment.

で 20 時間焼成した。加圧ゾル-ゲル処理は、種々のゲル溶液を加圧浸透させることにより行った。加圧ゾル-ゲル処理前後のシリカライト膜の分離特性は、浸透気化法により評価した。

3. 結果及び考察

加圧ゾル-ゲル処理にはシリカライト膜調製のための水性ゲル混合溶液及びゾル-ゲル溶液 (0.4 NH_3 -TEOS-0.8 H_2O -30EtOH) を用いた。表1に加圧ゾル-ゲル処理前後のシリカライト膜の浸透気化分離特性を示す。透過流束及び透過溶液中のエタノール濃度は共に加圧ゾル-ゲル処理により減少した。次に、加圧ゾル-ゲル処理後のシリカライト膜のスチーム処理 (170、48 時間) を行った。このときのシリカライト膜の浸透気化分離特性の変化を図2に示す。透過流束は減少したが、透過溶液中のエタノール濃度は増大した。加圧ゾル-ゲル・スチーム処理後のシリカライト膜表面のSEM像観察から、膜表面にはゲルから生成したと思われるシリカライト微結晶が存在していることが明らかとなった。このことは、加圧ゾル-ゲル処理によりシリカライト膜内に導入したゲルを結晶化させることにより、シリカライト膜の浸透気化分離特性が向上することを示している。なお、水性ゲル混合溶液中の平均ゲル粒径が 12nm と、シリカライト膜の結晶粒界の大きさ約 1nm より非常に大きいことを考慮すれば、粒界入口近傍に生成したこのシリカライト微結晶により結晶粒界の制御が起こっているものと考えられる。

keywords

シリカライト膜、浸透気化法、結晶粒界、加圧ゾル-ゲル処理