



Title	Characterization and Permeation Properties of Zeolitic Membranes Synthesized by Vapor-Phase Transport Method
Author(s)	松藤, 高明
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/42169
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	まつ 松 ふじ 藤 たか 高 あき 明
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 5 5 1 2 号
学 位 授 与 年 月 日	平成12年 3 月 24 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科化学系専攻
学 位 論 文 名	Characterization and Permeation Properties of Zeolitic Membranes Synthesized by Vapor-Phase Transport Method (気相輸送法を用いて合成したゼオライト膜のキャラクタリゼーションおよび透過特性)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 上山 惟一 (副査) 教 授 新田 友茂 教 授 大垣 一成

論 文 内 容 の 要 旨

高分子膜に比べ、耐熱性、耐有機溶媒性、機械的強度に優れた無機膜およびそれを用いた膜反応器への関心が高まっている。分子と同程度の大きさの細孔をもつゼオライトは、最も注目されている膜材料の一つである。ゼオライト膜の合成は、一般に、支持体を原料溶液に浸し、支持体上にゼオライトを析出させる水熱合成法が用いられている。一方、本研究では、乾燥前駆体ゲルを結晶化剤蒸気雰囲気下で処理して結晶化させる、気相輸送法という手法を用いている。現在までにゼオライト膜を用いた炭化水素の分離に関する論文は数多く報告されているが、結晶間に空隙が存在しない（緻密な）膜を用いた報告例は少なく、緻密な膜を用いた分離結果が必要であると言われている。

本論文では1章に緒言、6章に結言が述べられている。

2章では、気相輸送法によるゼオライト膜の形成過程を検討した。アルミナ支持体上にMFI、フェリエライト(FER)膜を合成時間を変化させて合成した。XRD、膜表面の同一部分のSEM観察および同一サンプルの断面のFE-SEM、EDX測定により、アルミナ支持体上のアルミノシリケート種が結晶化時に支持体の細孔内部に浸透し、最終的に支持体内に緻密なゼオライト-アルミナのコンポジット層を形成することを提案した。

3章では、ゼオライトの結晶化過程から得られた知見をもとに合成したMFIおよびFER膜の緻密さの評価を行った。緻密さの評価はプローブ分子の透過実験により判定した。プローブには、*n*-ヘキサン、*m*-キシレン、1, 3, 5-トリイソプロピルベンゼン(TIPB)を用いた。ゼオライトの細孔よりも大きいTIPBの透過流束が検出限界以下であれば、膜は緻密であると判断した。

4章では、MFIとFER膜を用いて、ブタン異性体の分離を試みた。いずれの膜でも、*n*-ブタンが選択的に膜を透過した。MFI粒子の吸着実験から混合系での吸着は競争吸着であり、これが分離に重要な役割をもっていることがわかった。

5章では、MFI膜とFER膜を用いたヘキサン異性体とキシレン異性体のパーペレーションについて検討した。MFI膜を用いた *n*-ヘキサン/2-メチルペンタンおよび *n*-ヘキサン/2, 3-ジメチルブタンの等モル混合物の分離係数は、それぞれ54、123であり、高い *n*-ヘキサン選択性が得られた。しかしながら、同じMFI膜を用いて、キシレン異性体の等モル混合物の分離を行ったところ、高い分離係数は得られなかった。一方、FER膜を用いたキシレン異性体の分離では、膜は高い *p*-キシレン選択性を示した。細孔の若干小さなFERを用いることで、*p*-キシレン/*m*-キシレンの分離が可能であることを示した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、気相輸送法を用いて合成したゼオライト膜について、その生成過程を実験的に明らかにし、膜の緻密性の評価法を確立するとともに、緻密な膜による炭化水素異性体分離の可能性を検討したものである。

第1章では、無機分離膜に関する既往の研究を網羅し、結晶間空隙のない緻密な膜を用いた実験的研究の必要性を論じている。

第2章では、気相輸送法によるゼオライト膜の形成過程を検討している。アルミナ支持体上のMFI、フェリエライト(FER)膜合成において、XRD、膜表面の同一部分の経時的なSEM観察、および同一サンプル断面のFE-SEM、EDX測定を行った結果、アルミナ支持体上のアルミノシリケート種が結晶化時に支持体の細孔内部に浸透し、最終的に支持体内に緻密なゼオライト-アルミナのコンポジット層を形成することを見出した。

第3章では、ゼオライトの結晶化過程から得られた知見をもとに合成したMFIおよびFER膜の緻密さの評価を行っている。緻密さの評価はプローブ分子の透過実験により判定した。プローブには、*n*-ヘキサン、*m*-キシレン、1, 3, 5-トリイソプロピルベンゼン(TIPB)を用いた。ゼオライトの細孔よりも大きいTIPBの透過流束が検出限界以下であれば、膜は緻密であるとする判定法を提案している。

第4章では、MFIとFER膜を用いて、ブタン異性体の分離を試みている。いずれの膜でも、*n*-ブタンが選択的に膜を透過した。MFI粒子の吸着実験から混合系での吸着は競争吸着であり、これが分離に重要な役割をもっていることを示した。

第5章では、MFI膜とFER膜を用いたヘキサン異性体とキシレン異性体のパーペーパレーションについて検討している。MFI膜を用いた*n*-ヘキサン/2-メチルペンタンおよび*n*-ヘキサン/2, 3-ジメチルブタンの等モル混合物の分離係数は、それぞれ54、123であり、高い*n*-ヘキサン選択性が得られたが、同じMFI膜を用いたキシレン異性体の等モル混合物の分離では、高い分離係数は得られなかった。一方、FER膜を用いたキシレン異性体の分離では、高い*p*-キシレン選択性を示した。結論として、細孔の若干小さなFERを用いることで、*p*-キシレン/*m*-キシレンの分離が可能であることを示した。

以上のように、本論文は、気相輸送法を用いて合成したゼオライト膜について、膜の緻密性の評価法を確立するとともに、緻密な膜による炭化水素異性体分離の可能性を示したものであり、博士(工学)の学位論文として価値があるものと認める。