

論 文 要 旨

2018 年 3 月 15 日

※報告番号	甲 第 218 号	氏 名	池田 歩
主論文題名			
シリカ複合膜の気体および液体の分離			
第 1 章 序論			
<p>日本は資源が少なく、安定なエネルギー資源の確保と限られたエネルギーの有効利用が重要である。そこで二酸化炭素排出量を削減し、省エネルギーな低炭素社会の実現に向けた取り組みがなされている。化学産業のうち、蒸留工程は日本の産業の二酸化炭素排出量の 8% を占めており、蒸留に代わる省エネルギーな分離技術の開発が期待されている。ここでは、アプリケーションとして、石油化学プロセスと熱化学水素製造 IS プロセスに着目し、分離技術として膜分離に焦点を当てた。分離膜は水処理技術として世界で普及している。市販膜の多くは有機膜であり、高温や酸性条件の化学プロセスへの適用は困難である。そこで耐薬品性や耐熱性をもつ無機膜の開発が期待されている。本研究では対向拡散 CVD 法で作製したシリカ複合膜の透過特性を理解するために気体透過性と液体透過性から細孔径を評価した。さらに各アプリケーションに向けた気体分離膜と液体分離膜の開発を行う。</p>			
第 2 章 実験方法・理論			
<p>本研究の実験方法と理論について述べた。</p>			
第 3 章 CVD シリカ複合膜の基礎透過特性			
<p>本章では、7 種類の異なる有機置換基（アルキル基系、フェニル基系、アミノアルキル基系）をもつシリカ源を製膜し、これらのシリカ複合膜の気体透過性と液体透過性から細孔径を評価した。気体透過性による細孔径評価では、シリカ複合膜別に細孔径の蒸着温度依存性を調べた。その結果、アルキル基系とフェニル基系シリカ複合膜は、各有機置換基の熱分解量が多いほど、細孔径が拡大することが分かった。細孔径が大きくなるに伴い、水素透過率が上昇することを確認し、シリカ源に導入した有機置換基のサイズと細孔径の関係を見出した。これよりシリカ源の有機置換基の種類を選択し、有機置換基の熱分解量を考慮することで、分離対象のサイズに合わせたシリカ複合膜の作製が行えるといえる。</p>			

※印欄記入不要

論 文 要 旨

2018年 1月 11日

※ 報告番号	第	号	氏 名	池田 歩
<p>シリカ複合膜の液体透過性評価では、水溶液の溶質として中性分子と電解質（イオン）を用い、膜の細孔径および荷電の影響を評価した。フェニル基をもつシリカ複合膜において、1価および2価イオンの透過性を評価したところ、市販の負電荷ナノろ過膜と異なる挙動を得た。一般的には、$MgCl_2$のような2価カチオンと1価アニオンで構成される物質の阻止率は、1価のカチオンとアニオンの物質（KCl、$NaCl$）の阻止率よりも低い。しかしフェニル基系シリカ複合膜では $MgCl_2$ 阻止率の方が高く、これは Mg^{2+} イオンのサイズが 0.86 nm と大きいため、分子ふるい効果により分離されたと考えられる。これらの結果から、液体分離にはフェニル基系やアミノプロピル基系の嵩高い有機置換基をもつシリカ複合膜が適していることを示した。</p> <p>第4章 気体分離膜の開発</p> <p>本章では、ヨウ化水素系、水素/炭化水素系、炭化水素系に適したシリカ複合膜の開発を行った。H_2/SF_6 透過率比を指標として用い、水素透過率の高いシリカ複合膜の蒸着条件を検討した。ヨウ化水素系は、反応温度 400°C で高い水素透過率と H_2/HI 透過率比が必要であり、蒸着温度 400°C 以上で作製した細孔径 $0.48\text{-}0.50\text{ nm}$ の HTMOS 膜が最適である。水素/炭化水素分離系では、細孔径 0.47 nm の PrTMOS 膜で最大 H_2/CH_4 透過率比 983、細孔径 0.50 nm の HTMOS 膜で最大 H_2/C_3H_8 透過率比 6.2×10^5 を得た。アルキル基の直鎖が長いシリカ源ほど、高水素透過率かつ水素分離性能高い膜が得られることが示唆された。</p> <p>第5章 液体分離膜の開発</p> <p>本章では、主にフェニル基系とアミノアルキル基系シリカ複合膜を用いて、硫酸および酢酸の逆浸透分離を行った。CVD法で作製したシリカ膜の逆浸透分離への検討例はないため、中性の $NaCl$ 水溶液を使い、シリカ複合膜の逆浸透分離性能を評価した。その結果、フェニル基系シリカ複合膜において、蒸着時の有効オゾン濃度が高い場合、Na イオン阻止率 94% を示し、シリカ複合膜の逆浸透分離への適用可能性が示唆された。硫酸逆浸透分離試験でも同様に 90% 以上の硫酸阻止率を示した。さらに透過流束の向上を目指し、フェニル基を2つ構造中にもつ DPhDMOS 膜を検討したところ、硫酸阻止率 92% のとき、$5\text{ kg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ を超える全透過流束を得た。さらに硫酸濃度依存性を評価し、1.0 M 硫酸下では透過流束が上昇する傾向が得られたため、Ga 添加基材による耐酸性の向上を検討した。酸性溶液中での長期安定性の検討や高濃度硫酸での試験が必要であるが、シリカ複合膜の硫酸逆浸透分離への展開に成功した。</p> <p>第6章 結論</p> <p>本研究の結論を述べ、まとめを行った。</p>				