

規則性ナノ空間の化学

研究代表者 松方 正彦
(先進理工学部 応用化学科 教授)

1. 研究課題

エネルギー・化学関連の産業における省エネルギー化は極めて重要な課題である。化学産業において、もっとも多くのエネルギーを消費するプロセスである蒸留分離は、様々な省エネルギー化技術が検討されているが、その省エネルギー効果については現行の技術では飽和状態であると言わざるを得ない。本研究では、分離工程の大規模な省エネルギー化を達成するため、規則性ナノ空間の化学的特性を活かした分子サイズによる分離を可能とする規則性ミクロ多孔体材料（ゼオライト）を用いた膜分離技術の研究開発を行うことを目的とし、様々な分離対象に適したゼオライト種を選定および高透過率・安定性を併せ持つゼオライト膜の開発を行う。当該研究期間においては、様々な細孔構造と組成を有するゼオライト種の合成方法と合成された膜構造と透過分離性能の評価方法に関する学理の構築を目指す。

2. 主な研究成果

これまでに複数のゼオライトについて薄膜化手法を検討してきた。今回はその中でも、耐酸性の向上を目的としたゼオライトの合成、透過性の向上を目的としたゼオライト膜の合成および膜反応器への適用について報告する。

2.1 耐酸性を有する SAPO-18 の合成

有機酸からの脱水工程への膜分離技術を適用する場合、膜素材は親水性と耐酸性を兼ね備えている必要がある。本検討では膜素材としてシリコアルミノリン酸塩系ゼオライト（SAPO-n）、なかでも 8 員環 3 次元構造を有する SAPO-18（AEI）に着目した。この結晶は細孔サイズが 0.38 nm であり、水と有機酸の混合物から分子ふるい作用により水を選択的に透過することができる期待できる。結晶の外側にシリケートのドメインを有する SAPO-18 結晶の合成方法を検討し、既往の研究と比較して高い耐酸性を有する SAPO-18 結晶を得ることができた。また、この合成方法を膜合成に適用することで比較的の高い耐酸性を有する膜の合成も可能にした。

2.2 高透過性を有するゼオライト膜の合成

膜分離において透過性は選択性ととともに、プロセス全体のコストを決定付ける重要なファクターである。一般的にゼオライト膜は多孔質支持体上に製膜され、透過性の向上にはゼオライト自身の透過性の向上のほかに、多孔質支持体の透過抵抗もゼオライト膜の透過性に影響すると考えられる。気孔率や細孔径が異なる α -alumina 支持体上に ZSM-5（MFI）膜を合成し透過分離特性を評価したところ、多孔質支持体の透過性が向上するとともに合成したゼオ

ライト膜の透過性が向上することを示すことができた。

また膜反応器は反応と分離を同時に行うことが可能であり、従来のプロセスと比較して省エネルギーかつ省スペースなプロセスとして期待されている (図1 参照)。透過性の向上したゼオライト膜をメタノール合成用膜反応器に適用した結果、高温域 (熱力学的平衡支配の条件) においてメタノール収率が向上することを実験およびシミュレーションの双方から示すことができた (図2 参照)。

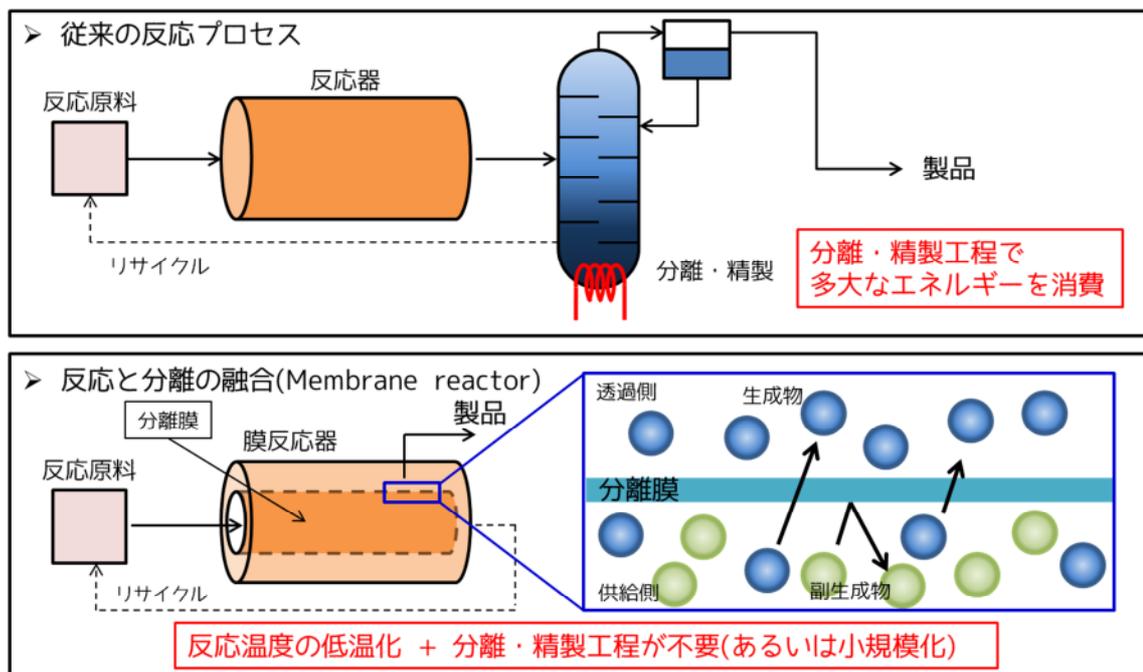


図1 従来の反応分離プロセスと膜反応器との比較

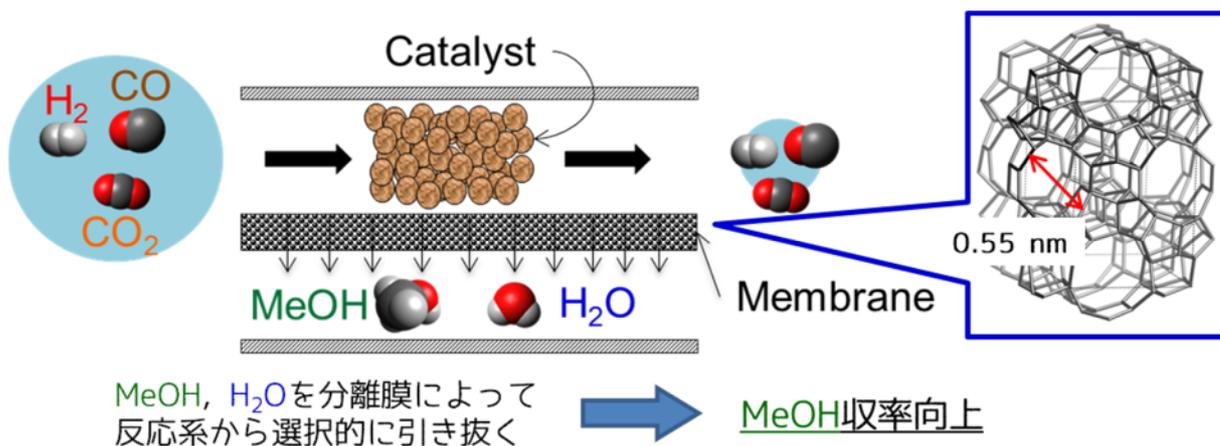


図2 メタノール合成用膜反応器のイメージ

3. 共同研究者

瀬下 雅博 (先進理工学部 応用化学科 助教)

酒井 求 (先進理工学研究科 応用化学専攻 助手)

4. 研究業績

4.1 学術論文

Sawamura, Ken-ichi; Furuhata, Taisuke; Sekine, Yasushi; Kikuchi, Eiichi; Subramanian, Bharathi; Matsukata, Masahiko: Zeolite Membrane for Dehydration of Isopropylalcohol-Water Mixture by Vapor Permeation, ACS Applied Materials & Interfaces, 7, 13728–13730 (2015)

瀬下 雅博, 酒井 求, 松方 正彦:吸着を用いたゼオライト膜の非破壊測定手法およびその解析方法, 膜(Membrane), 41, 30-35 (2016)

Kosuke Takaishi, Tetsuo Yamamoto, and Masahiko Matsukata: Synthesis of TS-1 with preferably distributing Ti in depth direction of crystals Chemistry Letters, 2016 on J-Stage, doi:10.1246/cl.160098

4.2 総説・著書

なし

4.3 招待講演

“2030年を超えて、未来の化学工業の姿に関する一考察”, 化学工学会北関東地区科学技術懇話会平成27年度総会および記念講演会, 宇都宮, 2015年6月.

“How membrane technology can contribute to the innovation of petrochemical industry”, Aseanian Membrane Society 9 (AMS9), Taipei, Taiwan, July 2015.

“Microporous Membrane Technologies for Energy and Chemicals Production”, ZMPC2015, July 2015

“Role of separation technologies for innovation of chemical industry”, The 7th China-Japan Symposium on Chemical Engineering, Beijin, China, October 2015.

4.4 受賞・表彰

なし

4.5 学会および社会的活動

2015年5月 日本膜学会第37年会 「無機膜が拓く新しいプロセス技術の展望」オーガナイザー

2015年4月～ (公社)化学工学会エネルギー部会 部会長

2016年4月～ (一社)日本ゼオライト学会会長

(公社)石油学会理事、運営委員会委員長

(一社)触媒学会経営委員会委員

グリーン・サステイナブルケミストリーネットワーク (GSCN) 運営委員長

日本吸着学会 評議員

日本膜学会 理事

5. 研究活動の課題と展望

透過性の異なる支持体上にゼオライト膜を合成することにより、透過性を向上させることに成功した。また透過性の向上した膜を用いたメタノール合成用膜反応器の有用性を実験およびシミュレーションの双方から実証することができた。一方で、透過性の向上と膜構造については未解明な部分も多く、来年度以降は透過性と膜構造の相関性についての解明にも注力する予定である。