

# MFI型ゼオライトsilicalite-1の表面修飾が水/有機溶媒分離に与える影響

①環境保全・資源再生 ②エネルギー ④ものづくり ⑧自然科学一般 ⑩ナノテクノロジー・材料研究

樋口雄斗\*1、田中俊輔\*2

(\*1院生) (\*2環境都市工学部 エネルギー・環境工学科 教授)

## 研究概要・成果

### Introduction

ゼオライトとは、多孔性アルミノケイ酸塩の総称であり、規則的な細孔径及び高い耐熱性を有することから分離プロセスや触媒反応プロセスなどに用いられている。

ゼオライトの一種であるsilicalite-1はSiとOのみから構成されており、ゼオライトの中でも高い耐熱性と疎水性を有することから、水/有機溶媒分離などの分離プロセスに用いられている。しかし、ゼオライトの表面末端には水酸基(OH基)が存在しており、比較的疎水性の高いゼオライトでも表面への水分子の吸着が免れないことから水/有機溶媒分離における分離選択性の低下が懸念される。したがって、本研究ではsilicalite-1表面の水酸基を疎水的なトリメチルシリル基に置換し、表面修飾することで粒子表面の物性が水/有機溶媒の分離プロセスにどのような影響を与えるのかを検討した。

### Experimental

surface modification of silicalite-1

silicalite-1 0.5 g

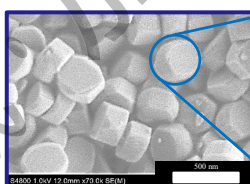
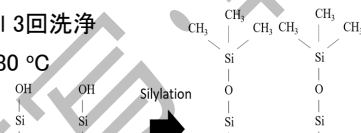
Ethoxytrimethylsilane (ETMS) X g  
(X = 0.01, 0.05, 0.1, 0.2, 0.3)

加熱 150 °C 24 h

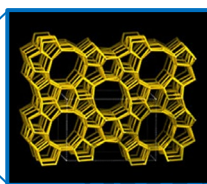
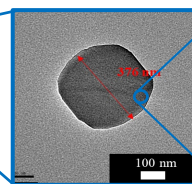
Ethanol 3回洗浄

乾燥 80 °C

products



Silicalite-1

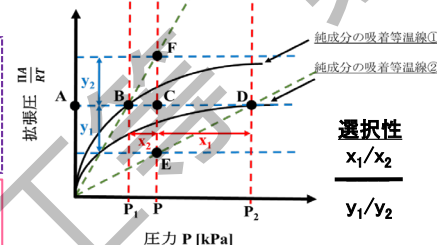


MFI structure

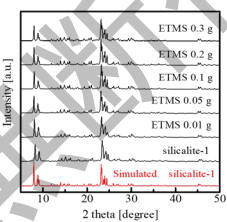
### 理想吸着相溶液理論 (IAST)

単成分の吸着等温線から多成分での吸着平衡を算出する  
本実験では水/エタノールの2成分系の理想選択性を算出

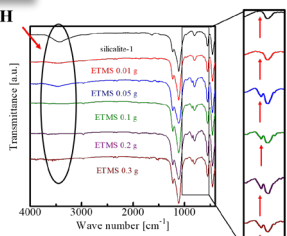
$$\frac{P_1 A}{RT} = \int_0^P \frac{n}{P} dP = \int_0^n \frac{\partial \ln P}{\partial \ln n} dn$$



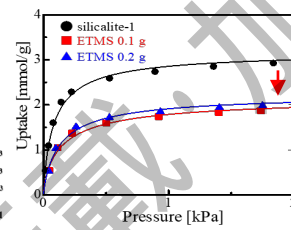
### Results & Discussion



XRD patterns

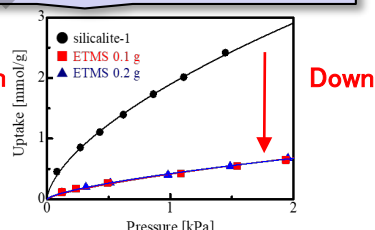


FT-IR spectra

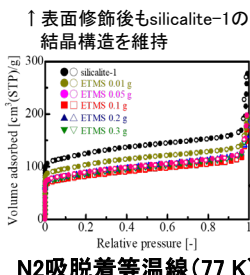


Ethanol (左) H<sub>2</sub>O (右) 吸着等温線 (25 °C)

表面の疎水化により水分子の吸着量が低下



測定条件 25 °C, 3.17 kPa

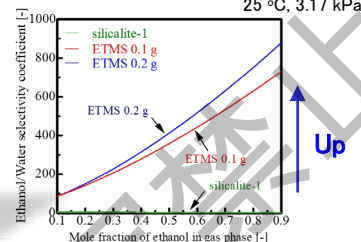


N<sub>2</sub>吸脱着等温線 (77 K)

- 850 cm<sup>-1</sup> トリメチルシリル基の伸縮振動によるピーク
- 3500 cm<sup>-1</sup> OH基による吸収ピークが減少 → 粒子表面の疎水化
- 粒子表面の水分子の量の低下
- ✓ 表面修飾後は粒子1個当たりの質量が増加 (比表面積及びミクロ孔容積の低下)
- ✓ ETMS 0.1 g以上では等温線に変化は見られなかった。したがって、silicalite-1 0.5 gに対して表面修飾に必要なETMSは0.1 g以上が妥当。

Silicalite-1粒子表面を疎水化させることでEthanol/H<sub>2</sub>O分離係数が急激に増加

水/有機溶媒系において高い分離性能が期待できる



Ethanol/H<sub>2</sub>O分離係数と気相中のEthanolのモル分率との関係

### Conclusion

- ✓ 粒子表面を疎水化させることでEthanol/H<sub>2</sub>Oの分離選択性が向上した
- ✓ 粒子表面の物性が分離プロセスにおいて重要であることが示唆された

### 応用分野、実用化可能分野

吸着・膜分離プロセス エネルギー分野 etc.

問合せ先: 関西大学 環境都市工学部 田中俊輔 E-mail: shun\_tnk@kansai-u.ac.jp

関大ORDIST 先端科学技術推進機構

社会連携部 産学官連携センター、知財センター、イノベーション創生センター