



グラフェン包接ゼオライト膜の構造

大塚隼人，吉川靖矩
信州大学先鋭材料研究所

キーワード：酸化グラフェン，ゼオライト，複合材料，気体分離膜

1. 背景と研究目的

酸化グラフェン（GO）で固体を包接した複合材料は近年広く研究されている。我々は無機多孔性材料の一つであるゼオライトを GO で包接した複合材料の気体分離の材料としての応用を目指している。GO は大気中で比較的安定であるが、加熱還元することで得られる還元型 GO (rGO) はより安定である。そこで我々は酸化グラフェンで包接したゼオライトを加熱還元し、グラフェン包接ゼオライト(Gr-MFI)を気体分離の材料として利用している。Gr-MFI による気体の分離機構はまだ明らかではないが、ゼオライトを包接しているグラフェンとゼオライトの隙間で分子ふるい機能が働き、気体が分離されていると考えている。本研究では気体分離メカニズム解明のため、グラフェンとゼオライトの隙間の距離をはじめとした膜の構造を明らかにする。

2. 実験内容

修正ハマーズ法によって得られた GO 分散液とゼオライトの分散液を塩の存在下で混合し、激しく振り混ぜたのちに数日間静置した。数日経つと GO 包接ゼオライトが分散液中で沈降し、この沈降をデカンテーションによって分離して凍結乾燥しスポンジ状の固体を得た。スポンジ状固体の固体をアルゴンフロー下で 623 K で 10 分間加熱還元し Gr-MFI を得た。Gr-MFI を $\phi 5$ mm の錠剤成型機に入れて 18 kN でプレスし膜化した。

3. 結果および考察

図 1 に MFI ゼオライト，Gr-MFI 及び rGO の加圧膜の X 線回折プロファイルを示す。Gr-MFI については低い気体の分離性能を示す膜（Gr-MFI-1）と高い気体の分離性能を示す膜（Gr-MFI-2）の 2 つについて示した。Gr-MFI 中のグラフェンとゼオライトの隙間は気体吸着等温線測定の結果からおおよそ 0.3~0.4 nm と推定されている。2 つの Gr-MFI の回折は MFI とよく似たプロファイルを示しているが、MFI に比べ 20° 付近のピークの裾が少し広がっている。これは rGO に見られる 20° 付近のピークが足し合わされているためと考えられる。MFI と rGO のプロファイルの合成から約 1wt% の rGO が Gr-MFI 中に存在すると推定された。また MFI に $2\theta = 35.3^\circ$ に見られたピークが Gr-MFI-1 では消失し、Gr-MFI-2 では $2\theta = 34.4^\circ$ に新たなピークが現れた。この構造は面間隔 0.229 nm 程度で気体吸着等温線から見積もられたグラフェンとゼオライトの隙間の大きさには対応しなかった。この構造が高い気体分離性能を示すための分子ふるい機能を与える構造かは断定できないが、もう一つの低い分離能を示す分離膜についても Gr-MFI-1 とほぼ一致する結果を示したため、高い分離能を与える膜特有の構造である可能性がある。今後再現性の確認も含め検討進めていく。

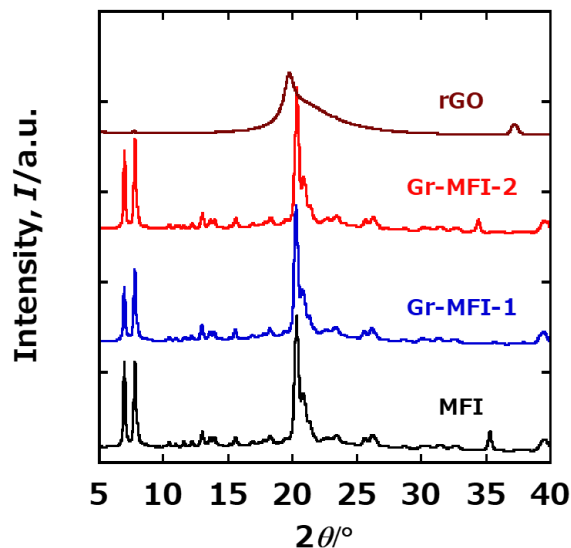


図 1 MFI ゼオライト Gr-MFI と rGO の X 線回折プロファイル。