界面欠損の形成を抑制した Core-shell 型シリカナノ粒子充填気体分離膜の創製

Development of core-shell type silica nanoparticles-filled gas separation membrane with less interfacial defects

山形大工 [1], 山形大院理工 [2], 産総研 [3], 山形大有機材料システセ [4]

○(B)佐藤　圭 [1], 斎藤　隆明 [2], 金崎　悠 [3], 石坂　孝之 [3], 牧野　貴至 [3], 増原　陽人 [2,4]

Fac. of Eng. Yamagata Univ.[1], Grad. Sch. of Sci. and Eng. Yamagata Univ.[2], AIST[3], FROM, Yamagata Univ.[4]

○Kei Sato[1], Takaaki Saito[2], Yu Kanasaki[3], Takayuki Ishizaka[3], Takashi Makino[3], Akito Masuhara[2,4]

E-mail: tfc66007@st.yamagata-u.ac.jp

【背景】膜を用いた分離技術は、高エネルギー効率での運用が可能であるため、様々な気体分離プロセスでの応用が期待されている。気体分離膜には、高い気体選択性及び透過性が求められる。しかし、気体分離膜は、一般に選択性と透過性の間にトレードオフの関係があり、分離性能に制約がある [1]。そこで、このトレードオフを克服するためのアプローチとして高分子マトリックスとナノ粒子の複合膜（MMM）がある。これは、マトリックス中へのナノ粒子添加により、マトリックスの自由体積が増加し、膜中での気体拡散性及び透過性が向上するためである [2]。高い気体選択性を有するマトリックス中にナノ粒子を充填した MMM を作製することで、高選択性・高透過性双方を有した気体分離膜の作製が可能となる。しかしながら、一般的にマトリックスとナノ粒子の相溶性は低いため、これらの界面に欠損が生じ、選択性が大幅に低下する。そのため、マトリックスとナノ粒子との相溶性を向上させ、界面欠損の形成を抑制することで、高選択性・高透過性の双方を両立し、従来膜を凌駕する性能を有した MMM の開発が求められている [3]。

そこで本研究では、MMM の材料として、粒子共存重合法（PwP 法）[4]により汎用のシリカナノ粒子表面全体に Polyacrylamide（PAM）を被覆した Core-shell 型シリカナノ粒子（Silica@PAM）を作製することで、高い気体選択性を有する Polyimide（PI）との相溶性向上を目指した。更に、この Silica@PAM を PI 中に充填することで、界面欠損の形成を抑制した気体分離膜の作製を試みた。

【実験】PwP 法により、シリカナノ粒子表面全体に PAM を被覆した Core-shell 型シリカナノ粒子（Silica@PAM）を作製した。Silica@PAM を PI 中に充填することで Silica@PAM/PI 膜を作製し、得られた膜の引張試験等、各種性能を評価した。

【結果・考察】Figure 1 に未処理のシリカナノ粒子を PI 中に充填した Silica/PI 膜及び Silica@PAM を PI 中に充填した Silica@PAM/PI 膜それぞれの断面 SEM 像を示した。Silica/PI 膜においては界面欠損が生じるが、Silica@PAM/PI 膜ではシリカナノ粒子表面に PAM を被覆したことにより界面欠損の形成が抑制されたことを明らかにした。また、引張試験の結果（Table1）より、Silica@PAM/PI 膜は界面欠損の形成が抑制されたことで、Silica/PI 膜と比較して引張強度が 118 %向上したことも明らかにした。その他測定結果の詳細は当日報告する。

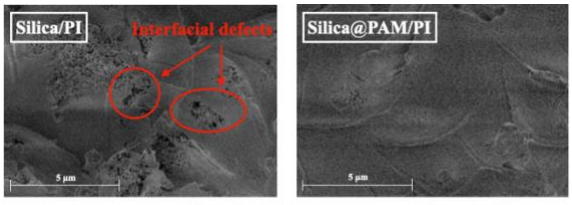

Figure1. Cross-section SEM images of Silica/PI and Silica@PAM/PI.

Table1. Tensile strength of Silica/PI and Silica@PAM/PI.

	Silica/PI	Silica@PAM/PI
Strength [MPa]	76.0	89.3
Strain [%]	6.44	7.60

【参考文献】

1) L. M. Robeson et al., J. Member. Sci. **320**, 390-400 (2008). 2) T. C. Merkel et al., Chem. Mater. **15**, 109-123 (2003).
3) S. Kanehashi et al., Front. Chem. **14**, 460-469 (2020). 4) T. Arita, Chem. Lett. **42**, 801-803 (2013).

© 2023年 応用物理学会