

令和 5 年 4 月 29 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02660

研究課題名(和文) 海洋エネルギー資源の安定確保に関する新たなアプローチ

研究課題名(英文) A new approach to securing energy resources from sea water stably

研究代表者

原 一広 (Hara, Kazuhiro)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：00180993

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、剛直なカーボンナノチューブをアクリルアミドゲルに挿入し、元素吸着に与える影響を調査した。カーボンナノチューブをプレゲル溶液に分散させ、ゲルを作製できることが分かった。カーボンナノチューブの導入により、ヤング率が増加し、吸着量の架橋剤濃度依存性が示された。また、カーボンナノチューブ導入により、吸着特性が向上する元素や減少する元素があることが分かった。本研究により、海水溶存ウランや有用元素の捕集高効率化の基礎的知見が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の社会的意義は、海水中に含まれるウランやその他の有用な元素を効率的に捕集する技術の開発に関する知見を提供したことである。この研究により、カーボンナノチューブの導入による吸着特性の違いが明らかになり、より効率的な捕集技術の開発につながる可能性がある。また、この技術の応用により、海洋資源の開発が促進され、我が国の発展に貢献することが期待される。更に、高分子材料におけるナノ材料の応用に関する基礎的な知見も得られ、材料科学分野の発展にも寄与することが期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, we investigated the effect of rigid carbon nanotubes inserted into acrylic amide gel on elemental adsorption. We dispersed the carbon nanotubes in pre-gel solution and were able to produce a gel. The introduction of carbon nanotubes increased the Young's modulus and showed a concentration-dependent adsorption of cross-linking agents. Furthermore, we found that the introduction of carbon nanotubes improved the adsorption of certain elements and decreased the adsorption of others. This study provides fundamental knowledge for the high-efficiency capture of uranium and valuable elements in seawater.

研究分野：物理学的視点からの環境浄化や資源開発

キーワード：海水ウラン捕集 資源枯渇 高分子ゲル吸着剤 カーボンナノファイバー 線重合 希薄元素 海水  
溶存資源 海洋エネルギー資源

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

エネルギー枯渇問題は、人類の生存に直結する重要な問題であり、原子力をエネルギー源として活用することが必要と思われるが、その燃料として使用される陸産ウランは、中央アジア、オーストラリア、アメリカなど世界のごく一部の地域にしか存在しておらず、輸入に頼っている我が国では供給不安が心配される。また、その採掘可能な期間も石炭と同程度の約 100 年程度と見込まれており、石油や石炭などの他のエネルギー資源と同様、枯渇が問題となっている。100 年後は孫世代が生きている時代であり、将来に向けての対策が求められている。

さらに、我が国のエネルギー自給率はわずか 6% であり、他のエネルギー資源を含めても海外に依存しているため、外部の情勢に大きく左右される状況にある。

一方、周囲を取り囲む海水中にはウランが含まれており、その平均濃度は 3.3ppb と非常に低いですが、地球上には膨大な量の海水が存在するため、海水中には世界中の原子力発電所の年間消費量の約 6 万倍に相当する約 45 億トンのウランが含まれていると推定されており、海水中の ppb レベルの希薄元素を効率的に取り出すことができれば、半永久的にエネルギー資源を確保することができる。特に、我が国は長い海岸線を持つ島国であり、陸産ウランとは異なり、アクセスが容易な海域でエネルギー資源を確保することができる。

### 2. 研究の目的

申請者は、高分子ゲル網目を基材として使用することにより、従来の不織布繊維を基材とした吸着材よりも 10 倍高いウラン吸着能を持つ吸着材を開発した。これは、申請者が考案した吸着能力向上の新しい見方が有効であることを示している。ただし、吸着率の値自体については、不織布繊維断面をゲル網目で埋めるという 2 次元的な概算に基づいても、更に 10 倍程度は高い吸着効率が期待されるが、何らかの阻害要因が存在する可能性が示唆された。

申請者が考える大きな要因は、直径 100  $\mu\text{m}$  の不織布繊維を空隙率の高いゲル網目で置き換えたことにより、溶液と吸着基多数が接触する基材表面積が増大した一方で、柔軟な網目で支えられる内部構造が軟弱であるため、熱や外部刺激によって網目高分子が揺らぎ、吸着基が揺動することにより、ウランの捕獲に必要な吸着基 2 個による挟み込み結合形成が阻害されることである。更に、吸着材は、高い表面積と小さな吸着基の揺動という相反する特性を持たなければならず、これまで利用されてきたゼオライトなどの無機材料では、空隙率が低いいため、吸着基とウランの接触面積を大きくできず、かつ、吸着材重量が大きくなり、運搬や取り扱いのコストが高くなるという問題がある。

そこで、本申請課題では、微細で剛直かつ軽量のカーボンナノチューブを挿入して、柔軟な網目高分子を強靱化し、ウランとの接触面積を大きくし、かつ吸着基の揺動を小さくすることができる吸着材を開発し、海水からウランを捕集することを目指した。

### 3. 研究の方法

本申請課題では、以下の方法により研究課題を遂行した。

#### (1) カーボンナノチューブの親水化

海水中で吸着材として使用する場合には親水化処理を行う必要がある。親水化には、化学処理やプラズマ照射などの様々な方法が提案されているが、利用可能な方法が全ての場合に報告されているわけではないため、状況に応じて独自の処方開発が必要となる。我々は研究論文を参考に化学処理によりカーボンナノチューブを親水化させ高分子吸着材の合成時に混ぜ込むことにより熱揺動を抑えた吸着材の作製を試みた。また、超音波照射と回転振動によりカーボンナノチューブを溶液中に効率よく拡散させる機器を導入し、親水化ナノチューブを使用するとともに、親水化していないカーボンナノチューブでもほぼゲル中に拡散させることを試みた。またカルボキシル基が導入されたカーボンナノチューブが市販されていたので、それでも吸着材を作製することにした。

#### (2) カーボンナノチューブ導入吸着材の調整

カーボンナノチューブの割合を調整することで、剛性が増し揺動が抑えられる一方、空隙率が低下し、溶液と反応できる部分が減少すると考えられる。そこで、カーボンナノチューブと他の素材の割合を変えて、空隙率の異なる試料を作り、高分子網目の剛性の微細な変化を網目全体の剛性測定や、レーザー光による動的散乱光を測定することで、カーボンナノチューブの導入が網目高分子の揺動に与える影響を検証した。また、電子顕微鏡を使用して、ゲル網目の構造を観察した。

#### (3) 吸着基の導入と吸着能力の検証

開発したカーボンナノチューブを用いた高分子ゲル基材に、ウランイオンを吸着するための吸着基を導入する予定であったが、ウラン溶存液の国内販売が中止されたので他の元素の吸着特性でイオン吸着能力と網目構造の特性変化を調べた。海水中には、ナトリウム、マグネシウムなどの高濃度イオンが混在するため、稀薄なウランイオンを捕集するためには、単一イオン水溶液

からの吸着能力だけでなく、多元素共存下での吸着競合条件下にあるウランイオンの選択的吸着性を評価することが重要なので、多元素共存下での吸着能特性を調べた。

#### 4. 研究成果

本研究では、剛直なカーボンナノチューブをアクリルアミドゲルへ挿入することに成功し、それによる元素吸着に与える影響を明らかにした。ミクロレベルのファイバー状物質を高分子ネットワークに挿入することにより力学強度を増加させると同時にミクロな熱運動を抑え吸着効率を上げることが目指した。本研究で得られた成果を以下に示す。

- (1) カーボンナノチューブを親水化するか分散機を使い、プレゲル溶液に先に分散させることでゲルを作製できることが分かった。
- (2) カーボンナノチューブを導入することで、ヤング率が顕著に増加する。疎水性のままのカーボンナノチューブを分散させると疎水性カーボンナノチューブのネットワークが出来て、硬いスポンジ状になる。
- (3) 疎水性カーボンナノチューブの場合、導入濃度が0.5%から1.0%の間ではヤング率の変化が少なく、この濃度ではネットワークが充分発達しない。
- (4) カーボンナノチューブを導入することで、動的光散乱の自己相関関数が減少する相関時間が長くなり微小なスケールの揺らぎを抑制できることが分かった。
- (5) 図2は様々な効果を補正し、カーボンナノチューブを挿入したアクリルアミドゲルと導入しないものとの吸着定数の差を元素ごとに示したものである。カーボンナノチューブを導入したアクリルアミドゲルにおいて単位重量当たりの架橋剤濃度が大きいほど吸着量が大きくなるという吸着量の架橋剤濃度依存性が示された。
- (6) カーボンナノチューブを導入することで、吸着特性が向上する元素、変化が小さい元素、減少する元素など、元素による違いがみられた。
- (7) カーボンナノチューブ導入量を増やすと、吸着量が減少する元素が確認された。
- (8) カーボンナノチューブを導入することで、Fe、Mo、Biでは吸着量が増加した。

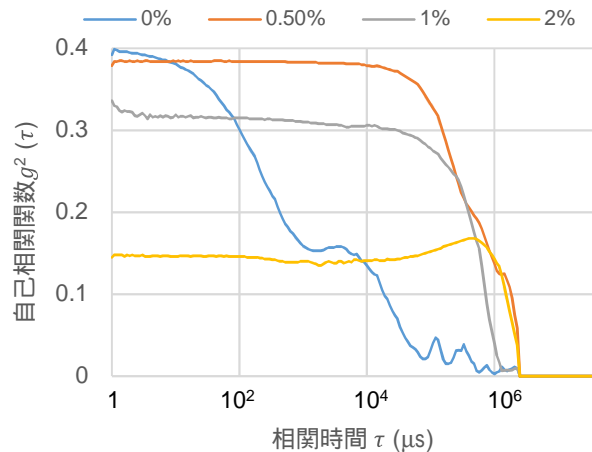


図1 動的光散乱による相関時間に対する自己相関関数

本研究によってカーボンナノチューブ

導入によるイオン吸着特性の違いは、分子鎖の熱運動ゆらぎの抑制による影響が大きいと考えられる。更なるイオン吸着特性解明のためには、より詳細なパラメータでのゆらぎや吸着量の調査が必要ではあるが、本研究によって海水溶存ウランやその他有用元素の捕集高効率化の基礎的知見が得られた。今回の成果は、陸産資源の乏しい我が国の発展のために大いに貢献するものと考えられる。

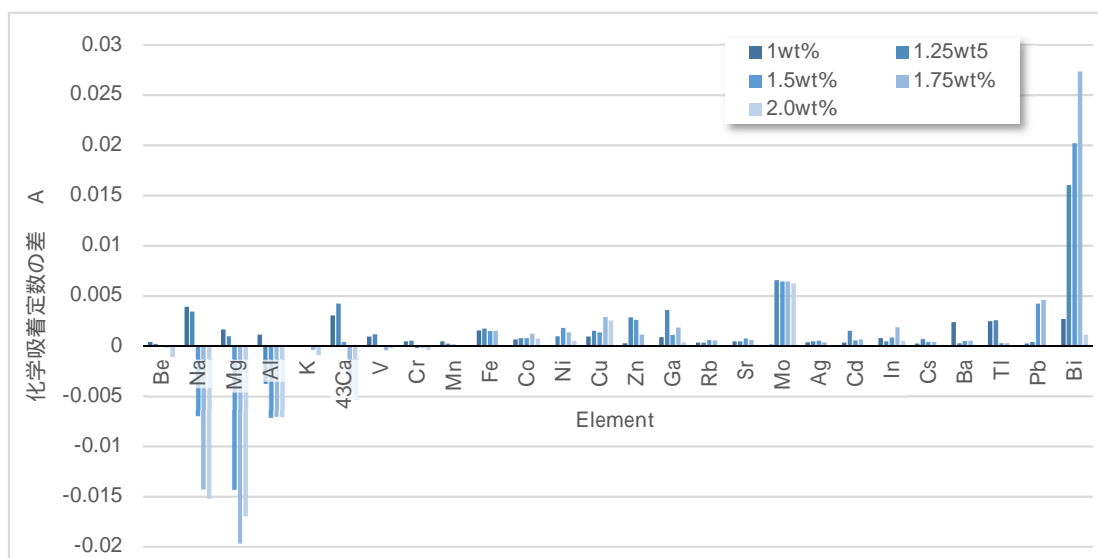


図2 カーボンナノチューブを挿入したアクリルアミドゲルと導入しないものとの元素毎の吸着定数の差

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nguyen Sura, Hirotaka Okabe, Brian A. Omondi, Albert Mufundirwa, Yoshiki Hidaka, Kazuhiro Hara	4. 巻 80
2. 論文標題 Study on the influence of inductive groups on the performance of carboxylate-based hydrogel polymer network	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Polymer Testing	6. 最初と最後の頁 106117(1)-(9)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.polymertesting.2019.106117	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tran Thu Hong, Hirotaka Okabe, Yoshiki Hidaka, Brian A. Omoldi, Kazuhiro Hara	4. 巻 181
2. 論文標題 Radiation induced modified CMC-based hydrogel with enhanced reusability for heavy metal ions adsorption	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 polymer	6. 最初と最後の頁 121772(1)-(9)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.polymer.2019.121772	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 田麻 太一、岡部 弘高、日高 芳樹、原 一広
2. 発表標題 カーボンナノファイバー挿入アクリルアミドゲルによる重金属吸着
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 梅田旭太郎、岡部弘高、日高芳樹、原一広
2. 発表標題 環状官能基による水溶液溶存リチウム吸着
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田藤 太一、岡部 弘高、日高 芳樹、原 一広
2. 発表標題 カーボンナノファイバーを挿入したアクリルアミドゲルを用いた重金属回収
3. 学会等名 2021 応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大森康平、松元達也、劉維、守田幸路、岡部弘高、原一広
2. 発表標題 多孔質壁の毛細管力による液相輸送のシミュレーション
3. 学会等名 日本原子力学会九州支部第40回研究発表講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 藤本健太郎、岡部弘高、日高芳樹、原 一広
2. 発表標題 強酸・強塩基末端を持つアクリルアミドゲルを用いた重金属吸着 / Heavy Metal Adsorption Using Acrylamide Gels with Strong Acid and Strong Base Ends
3. 学会等名 0th Annual Meeting of MRS-Japan 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 國廣大志、河野真也、日高芳樹、原 一広、岡部弘高
2. 発表標題 液晶エラストマーの弾性率温度依存性 / Temperature Dependence of Elastic Modulus of Liquid Crystal Elastomer
3. 学会等名 0th Annual Meeting of MRS-Japan 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤本健太郎、岡部弘高、日高芳樹、原 一広
2. 発表標題 強酸・強塩基末端を持つアクリルアミドゲルを用いた重金属回収 /Heavy metal recovery using acrylamide gels with strong acid and strong base ends
3. 学会等名 令和2年度応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菊次 瑞規、岡部 弘高、日高 芳樹、 原 一広
2. 発表標題 線重合アクリルアミドゲルの吸着特性
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tran Thu Hong, Okabe Hirota, Hidaka Yoshiki, Hara Kazuhiro
2. 発表標題 Gamma radiation modified CMC-based hydrogels: Behaviour of heavy metal ion removal from aqueous solution
3. 学会等名 The 88th JSAP Autumn Meeting 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 菊次 瑞規、岡部 弘高、日高 芳樹、原 一広
2. 発表標題 線重合条件によるアクリルアミドゲルの多元素吸着特性変化
3. 学会等名 令和元年度応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤本 健太郎, 原 一広, 岡部 弘高, 日高 芳樹
2. 発表標題 強酸・強塩基末端を有するアクリルアミドゲルの重金属吸着特性
3. 学会等名 令和元年度応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tran Thu Hong, Hirotaka Okabe, Yoshiki Hidaka, Kazuhiro Hara
2. 発表標題 Removal of heavy metal ions from aquatic environment using radiation-modified carboxymethyl cellulose hydrogels
3. 学会等名 29th Annual Meeting of MRS-J
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 菊次 瑞規, 岡部 弘高, 日高 芳樹, 原 一広
2. 発表標題 線重合アクリルアミドゲルの元素吸着能に影響を与える条件
3. 学会等名 2020年 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	岡部 弘高  (OKABE HIROTAKA)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	日高 芳樹  (HIDAKA YOSHIKI)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関