

令和 3 年 8 月 19 日現在

機関番号：80122

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K20478

研究課題名(和文)カーボンゲルをモデル吸着剤とした液相吸着のメカニズム解明

研究課題名(英文)Clarification of mechanism of liquid-phase adsorption using carbon gels as model adsorbents

研究代表者

吉田 誠一郎 (Yoshida, Seiichiro)

地方独立行政法人北海道立総合研究機構・産業技術環境研究本部 工業試験場・研究職員

研究者番号：00806002

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、液相吸着を支配する因子を制御可能な多孔質炭素材料のカーボンゲルをモデル吸着剤に、化学的特性のパリエーションが豊富な色素をモデル吸着質に用いた吸着実験により液相吸着のメカニズムの解明を目指した。異なる分子量を有する色素に対して、細孔径の異なるカーボンゲルを用いた液相吸着実験を行った結果、分子サイズによって色素が吸着する細孔の大きさが異なることが判明した。また、吸着速度はカーボンゲルの粒子径が小さいほど顕著に大きくなるが、平衡吸着量は粒子径に依存しないことが判明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液相吸着は色素の除去やエキスの脱色等の様々な分野で広く用いられているが、その現象が非常に複雑であり詳細なメカニズム解明は困難であった。本研究において、液相吸着の支配因子を自由に制御可能なカーボンゲルをモデル吸着剤に適用することで、液相吸着のメカニズムがより詳細に明らかになった。本成果を活用することで、合理的な液相吸着のプロセス設計や吸着剤の構造設計が可能になると考える。

研究成果の概要(英文)：In this research, we aimed to elucidate mechanisms of liquid-phase adsorption through adsorption experiments by using carbon gels, porous carbon materials with controllable factors governing liquid-phase adsorption, as model adsorbents and dyes with a wide variety of chemical properties as model adsorbates. As a result of liquid-phase adsorption experiments, we found that pores of carbon gels, which dyes are adsorbed, to depend on molecular weights of dyes. It was also found that the adsorption rate significantly increased with decreasing of particle sizes of the carbon gels, however the equilibrium adsorption amounts were independent of the particle sizes.

研究分野：化学工学

キーワード：吸着 多孔質材料 カーボンゲル 色素

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

液相を対象とした吸着分離は色素の除去やエキスの脱色等の様々な分野で広く用いられているが、その現象が非常に複雑であり詳細なメカニズム解明は困難である。そこで本研究では、液相吸着における吸着剤のモデルとして、多孔質炭素材料のカーボングェル (CG) を適用し、液相吸着の機構を解明することを検討した。CG は色素などの吸着の場と考えられるメソ細孔の分布を制御可能な多孔質炭素材料であり、液相吸着のメカニズム解明における理想的なモデル吸着剤と考えられる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、液相吸着を支配する細孔特性、表面特性、粒子径を制御可能な多孔質炭素材料の CG をモデル吸着剤に、化学的特性のバリエーションが豊富な色素をモデル吸着質に用いた吸着実験により液相吸着のメカニズムを詳細に解明することである。

3. 研究の方法

CG の前駆体となるレゾルシノール・ホルムアルデヒド (RF) を調製し、不活性雰囲気下 1273 K で炭素化することで CG を得た。RF 調製時の触媒量に相当する R/C を変えることで、細孔径分布の異なる CG を調製した。また、硝酸処理による CG への酸性官能基の導入も行った。77 K における窒素吸脱着測定からグランドカノニカルモンテカルロ (GCMC) 法により表面積を求めた。

液相吸着実験は、モデル色素である Methylene Blue (MB)、Acid Red 13 (AR) のリン酸緩衝溶液 (pH 7) をそれぞれ調製し実験に供した。所定濃度の色素溶液に CG を加え、298 K の温度に保った振とう器で 100 rpm の速度で振とうすることで吸着実験を行った。所定時間ごとの色素の濃度を紫外可視 (UV-vis) 分光光度計により測定し、吸着平衡時の色素濃度から吸着量を求め、吸着等温線を作製した。

4. 研究成果

図 1 に、合成した CG の細孔径分布を示した。R/C の値を変えることで細孔径分布の異なる CG が得られたことから、これらをモデル吸着剤に供して色素の液相吸着試験を行った。

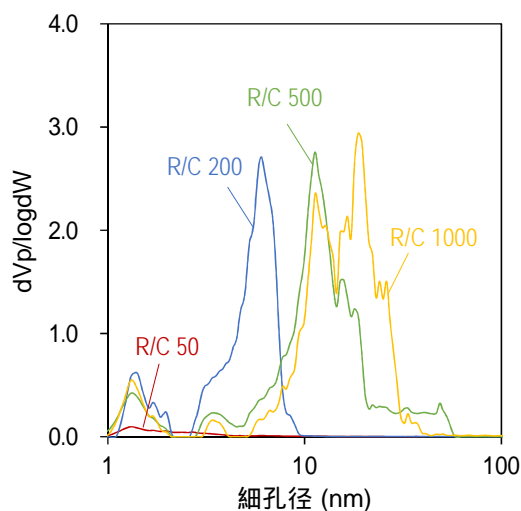


図 1. CG の細孔径分布

代表的な色素である MB の CG に対する吸着等温線を図 2 に示す。R/C 200 の CG に対する MB の最大吸着量は R/C 50 の約 12 倍であり、CG の細孔径分布の影響が大きいことがわかる。また、得られた吸着等温線は Langmuir 型の等温線と良好に適合した。

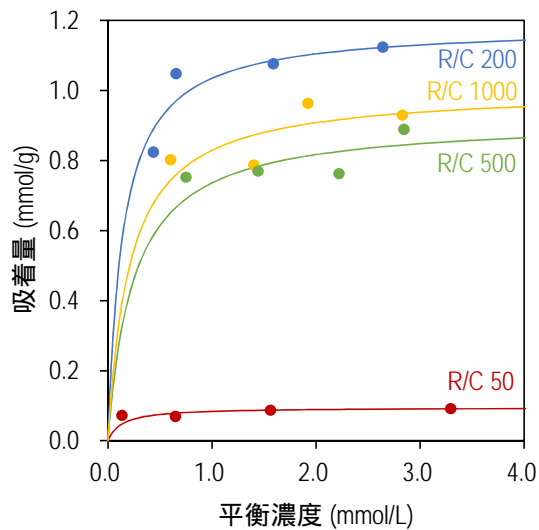


図 2. MB に対する CG の吸着等温線 (25°C)

MB (分子量 320) よりも分子量の大きな色素である AR (分子量 502) の CG に対する吸着等温線も Langmuir 式に良好に適合したが、CG に対する最大吸着容量の序列が MB とは異なり、MB と AR では寄与する細孔の範囲が異なることが示唆される (図 3)。

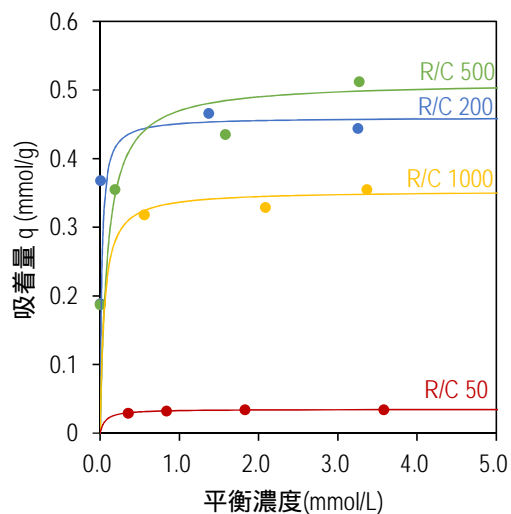


図 3. AR に対する CG の吸着等温線 (25°C)

そこでこれらの結果を詳細に解析するために、R/C の異なる CG の細孔径分布からそれぞれの細孔の積算表面積を計算し、これを Langmuir 式から求めた色素の最大吸着量に対してプロットした。その際、積算する細孔の範囲を変え、最大吸着量との関連性を調査した。径が 0.6 nm 以上の細孔の積算表面積を MB の最大吸着量に対してプロットすると、図 4 のような比例関係が得られた。よって、MB は 0.6 nm 以上の細孔に単層で吸着していることが示唆される。また、AR について、同様の実験と解析を行ったところ、1 nm 以上の細孔の積算表面積と AR の最大吸着量に比例関係が得られた。これらの結果から、それぞれの色素の分子量によって有効な細孔の範囲が存在し、その有効な細孔の表面に色素が吸着していることが明らかとなった。

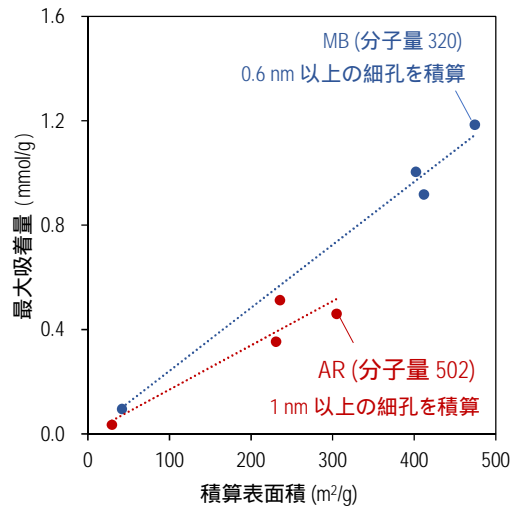


図 4. 色素の最大吸着量と CG の積算表面積の関係

続いて、粒子径の異なる CG (R/C1000) に対する MB の吸着速度の比較を行った。粒子径が小さいほど吸着速度は顕著に増大したが、平衡吸着量はいずれの粒子径の区分でも大きな差が見られなかった (図 5)。よって、細孔の形状などにより MB が到達できない細孔は無く、MB が吸着可能な細孔のすべてが利用されていることがわかる。

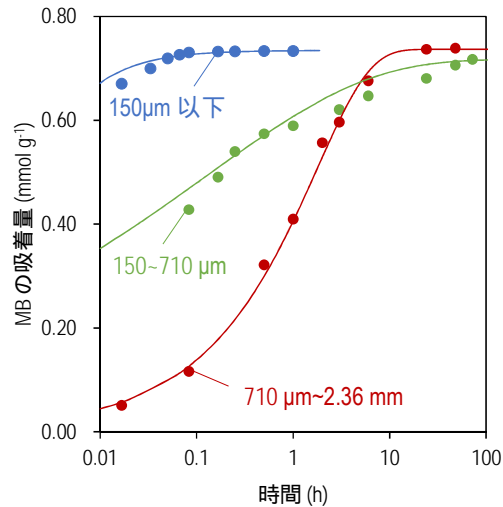


図 5. 粒子サイズの異なる MB に対する吸着速度 (R/C 1000, 25°C)

また、酸処理により酸性官能基を導入した CG (R/C1000) について、MB の吸着特性を比較した所、今回の条件では最大吸着量にほとんど差はみられなかった。これは、CG に対する MB の吸着は表面特性ではなく、細孔径の影響が大きいことを示唆している。

以上の結果より、CG が色素の液相吸着メカニズムを解明する上で理想的なモデルであることが明らかとなった。特に、色素の分子量によって有効となる細孔の範囲が存在することが明らかとなった。一方で、粒子径や表面特性の影響は顕著ではないことも明らかとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 吉田誠一郎・松嶋景一郎・近藤永樹・鎌田樹志
2. 発表標題 多孔質炭素材料を用いた液相吸着のモデル化
3. 学会等名 日本セラミックス協会東北北海道支部 第28回北海道地区セミナー2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉田誠一郎・松嶋景一郎・近藤永樹・鎌田樹志
2. 発表標題 カーボンをモデル吸着材に用いた色素の吸着機構の解明
3. 学会等名 化学工学会 第86年会
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------