

## 研究成果報告書

研究テーマ (和文)	ゼロエネルギーでの分子制御技術開発		
研究テーマ (英文)	Energy-free Molecular Separation		
研究期間	2019 年 ~ 2020 年	研究機関名 千葉大学	
研究代表者	氏名	(漢字)	大場友則
		(カタカナ)	オオバトモノリ
		(英文)	TOMONORI OHBA
	所属機関・職名	千葉大学	
共同研究者 (1名をこえる場合は、別紙追加用紙へ)	氏名	(漢字)	
		(カタカナ)	
		(英文)	
	所属機関・職名		

概要 (600字~800字程度にまとめてください。)

分子分離技術は主には深冷分離、吸着分離、膜分離が挙げられるが、どの技術を用いてもエネルギーを相当使用する。本研究では、細孔性グラフェンを用いることで、エネルギーをほとんど使用しない分子分離技術開発を試みた。

1300 K程度の温度でメタンガスを炭素源として、0.08 μm厚の銅基盤上に化学蒸着させることで、グラフェンを合成する。合成したグラフェンを担体に転写することで、下記の分離実験に用いた。合成されたグラフェンの層数、結晶化度を評価するためにラマン散乱分枝測定を行った。ここで、ラマン散乱の2D-、G-バンドからグラフェンの層数が、G-、D-バンドから結晶化度を調べることができる。単層グラフェン合成条件で合成されたグラフェンは2D/Gバンド比が1.7-2.6であり、おおむね単層グラフェンと言える。また、D/Gバンド比はほぼゼロであり、欠陥の極めて少ないグラフェンであった。

このグラフェンを用い、1. 気体分離性能テスト、2. 選択的気体吸着特性評価、3. 溶液中での選択的イオン吸着評価を行った。

### 1. 気体分離性能テスト

水素、アンモニアガスに対し、透過性能評価を行った。分離性はどのグラフェンにおいてもおおよそ  $H_2/NH_3 = 1.5$  であり、単層グラフェンの透過性は  $4-40 \text{ mol Pa}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 、2層グラフェンの透過性は  $20-200 \text{ mol Pa}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$  であった。これらの結果から、一般的な分離膜と比べて、分離性能は同程度であったが、透過性は極めて高く、 $10^5-10^8$  倍の透過性を示した。

### 2. 選択的気体吸着特性評価

アンモニアガス流通下において、グラフェン電気伝導性が変わり、グラフェンに対し、化学吸着的に吸着していることが示唆された。これが、極めて薄いグラフェン膜で高い分離性能を示す原因であると考えられる。

### 3. 溶液中での選択的イオン吸着評価

水溶液中で、大きなサイズの無機イオンが脱水和を起こしやすく、グラフェンとの親和性が高いことが示された。グラフェン界面上でのイオン選択性が発現したと考えられる。

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）						
雑誌	論文課題	Piezoresistive and chemiresistive gas sensing by metal-free graphene layers				
	著者名	Kitayama, H., Ekayev, M. C., and Ohba, T.	雑誌名	Physical Chemistry Chememical Physics		
	ページ	3089~3096	発行年	2 0 2 0	巻号	5
雑誌	論文課題	Dehydration of Cations Inducing Fast Ion Transfer and High Electrical Capacitance Performance on Graphene Electrode in Aqueous Electrolytes.				
	著者名	Faraezi, S., Khan, M. S., and Ohba, T.	雑誌名	Industrial & Engineering Chemistry Research		
	ページ	5768~5774	発行年	2 0 2 0	巻号	13
雑誌	論文課題					
	著者名		雑誌名			
	ページ	~	発行年		巻号	
図書	書名					
	著者名					
	出版社		発行年		総ページ	
図書	書名					
	著者名					
	出版社		発行年		総ページ	

英文抄録（100語～200語程度にまとめてください。）

Major molecular separation techniques are well-known as cryogenic separation, adsorption separation, and membrane separation. Although those techniques have been used for long ages, those need energies for liquefaction, pressure swinging, and pressurization. Graphene could be fruitful way for molecular separation, because graphene is to be the thinnest sheet and all surfaces are exposure. In this work, we use graphene as gas separation sheet, specific adsorption media, and ion selective adsorption materials. In the gas separation test, graphene has the performance on the high selectivity of H<sub>2</sub> over NH<sub>3</sub> was approximately 1.5 and extremely high permeability 4–200 mol Pa<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup> m<sup>-2</sup>, which was 10<sup>5</sup> times higher than the preceding materials. The reason of the extremely high permeance is that gas can be permeable only by passing through nanometer thickness graphene pores. In addition, NH<sub>3</sub> gas was chemisorbed on surface oxygen groups on porous graphene, providing high selectivity. For the usage of ion separation in aqueous solution, graphene has weak interaction potentials with ions, because of hydrophobic surfaces of graphene. Potassium ions were however preferentially adsorbed on graphene surfaces. Potassium ions was here the largest ions in this work. The preferential adsorption was occurred by easier dehydration. The selective ion adsorption might be possible by controlling hydrophobicity on graphene interface, related to surface oxygen groups.