

令和 4 年 6 月 3 日現在

機関番号：34419

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K20485

研究課題名(和文)茶粕廃棄物の新規再資源化方法の開発および有害金属除去能の検討

研究課題名(英文)Development of new recycling way of tea leaves and adsorption capability for harmful metal

研究代表者

中村 武浩(Nakamura, Takehiro)

近畿大学・薬学部・助教

研究者番号：60803773

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、国内外および様々な地域で消費される21種類の茶葉(紅茶6種、緑茶4種、烏龍茶4種、ハーブ茶2種、健康茶5種)から得られた茶粕を用い、有害金属5種(カドミウム、鉛、クロム、ヒ素、水銀)およびイオン性染料5種(アシッドオレンジ7、メチレンブルー、カヤクリル染料3種)の吸着除去性能を解析した。吸着剤としての物理化学的特性および吸着パラメータを評価することで、その吸着機構を解析した。茶粕は特別な処理を施すことなく、上記の有害物質の内、カチオン性を有するものに対し、高い吸着性能を発揮しうることを明らかとすることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、茶粕の新たな再資源化方法として水質汚染物質に対する吸着剤へ適用が可能であることを示すものである。また、比較的大きなスケールで、特別な処理を施すことなく、簡易な操作で、時や場所を選ばずに適用可能な方法であるため、世界中のあらゆる場所や地域で実用化できる可能性がある。さらに、この現象が特定の茶種に限らず、多くの茶種で同様の機構を以って起こる現象であるとする知見を見出している。再資源化の利用先を広げることで産業廃棄物を減容し、水質汚染物質を除去することで、安全な水の確保や水域環境を保全するSGDsへの貢献が考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, used tea leaves were prepared from the 21 most consumed varieties of tea worldwide. The leaves were used as an adsorbent. For the adsorbates, 5 ionic dyes were used and 5 toxic metals. The physicochemical characterization and adsorption parameters were examined and practical knowledge for predicting adsorption mechanisms was obtained. These results show many types of tea can be used for efficient adsorption of cationic dyes or harmful metals with simple application as tea waste.

研究分野：吸着化学

キーワード：茶粕 有害金属 染料 水質浄化 吸着

1. 研究開始当初の背景

茶飲料は日本国内でも消費量の多い飲料種であり、年間約 600 万 kl が生産された結果、約 12 万トン/年の茶粕廃棄物が排出されている。茶粕廃棄物には有機資源として再利用可能な成分が多く残されているが腐敗が進行しやすく、飼料化、工業材料化、エネルギー化のいずれにおいてもリサイクルするためのコストや施設整備等が問題となる。本研究では、当該領域でほとんど活用されていない「有機金属錯体の反応理論」を応用し、汚染水中の有害な金属を除去する「リサイクル資源」として、茶粕廃棄物を低コストで活用する新たな再資源化技術を検討する。

2. 研究の目的

当該領域における茶粕の吸着剤利用は、限られた報告しか存在していない。本研究では 21 種類の茶粕を比較・検討することで、既存の報告とは隔絶した新しい知見を輩出することを目的として実施した。茶粕には茶葉由来の有機成分が多く残されているため、これを介した有害物質の除去能力を発揮することが期待される。有害物質には一般排水基準値が定められているカドミウム、鉛、クロム、ヒ素、水銀の 5 種を用いることで、毒性を持つ金属種による水質汚染への適応を考えた。また、さらなる適応拡大を目的として、染料排水にも着目した。染料には汎用的に用いられるイオン性染料を検討し、メチレンブルー(MB)、アシッドオレンジ 7(O⁻), Kayacryl Red GRL-ED, Kayacryl Blue GSL-ED, Kayacryl Black の 5 種とした。処理方法は、より簡易な操作方法として吸着法での検討を行うこととした。本研究では、これらの吸着現象における詳細な吸着機構を解析することで、学術的な知見の輩出だけでなく、実用化の可能性も検討した。

3. 研究の方法

茶粕は 21 種類の茶葉* (紅茶 6 種: アッサム, セイロンウバ, セイロンディンブラ, ケニア, ダージリン, ニルギリ, 緑茶 4 種: ほうじ茶, 玄米茶, 煎茶, 番茶, 烏龍茶 4 種: プーアール, 水仙, ジャスミン, 東方美人, ハーブ茶 2 種: ルイボス, ローズヒップ, 健康茶 5 種: 大麦, グアバ, とうもろこし, パナバ, マテ) から一煎後、放冷したものとし、これを吸着剤として使用した。吸着質は有害金属 5 種 (カドミウム, 鉛, クロム, ヒ素, 水銀) およびイオン性染料 5 種 (アシッドオレンジ 7, メチレンブルー, カヤクリル染料 3 種) を検討した。吸着処理後の金属イオン濃度は、誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (ICP-OES) を用いて測定した。染料濃度は吸光度法により測定した。基礎的な吸着パラメータとして、吸着等温線およびモデル式への適合、pH あるいは温度による影響、吸着速度および速度式の解析を行った。また、吸着剤の物理化学的性質として、表面官能基、比表面積、表面元素状態などを解析した。吸着剤を構成する有機質成分については、抽出物から高速液体クロマトグラフ (HPLC) を用いて解析した。これらの結果より、本吸着現象における吸着特性および吸着機構を詳細に解析した。

* 下記 Table 1. のようにナンバリングした (Chemical and Pharmaceutical Bulletin, Vol.70, 254-260, 2022 より抜粋)。

Table 1. Types of tea leaves.

| Tea names and serial number | |
|---------------------------------------|---------------------------------------|
| Black tea | Oolong tea |
| 1. Assam | 11. Pu-erh |
| 2. Ceylon uva | 12. Nacrissus |
| 3. Ceylon dimbra | 13. Jasmine |
| 4. Kenya | 14. Oriental Beauty(white tip oolong) |
| 5. Darjeeling | Herb tea |
| 6. Nilgiri | 15. Rooibos |
| Green tea | 16. Rose hip |
| 7. <i>Hojicha</i> (roasted green tea) | Healthy tea |
| 8. Brown rice | 17. Barley |
| 9. <i>Sencha</i> (green tea) | 18. Guava |
| 10. <i>Bancha</i> (coarse tea) | 19. Corn |
| | 20. Banaba |
| | 21. Mate |

4. 研究成果

本研究の結果から、茶粕にはカチオン性の汚染物質を吸着する性質があることが確かめられた。また、多くの茶種を検討したことにより、この性質が特定の茶種に限られたものではなく、多くの茶種に共通の能力であることが示唆された。吸着機構に寄与が大きい因子およびその寄与度については、追加で検討が必要な部分が残されたが、茶粕中の有機成分がカチオンの吸着に関与する化学吸着の様相であることがわかっている。物理化学的特性の一つとして、茶葉表面の電子顕微鏡画像も解析を行ったが、吸着能力を大きく左右する構造的な特徴は確認されなかった(下記 Fig.1 を参照)。

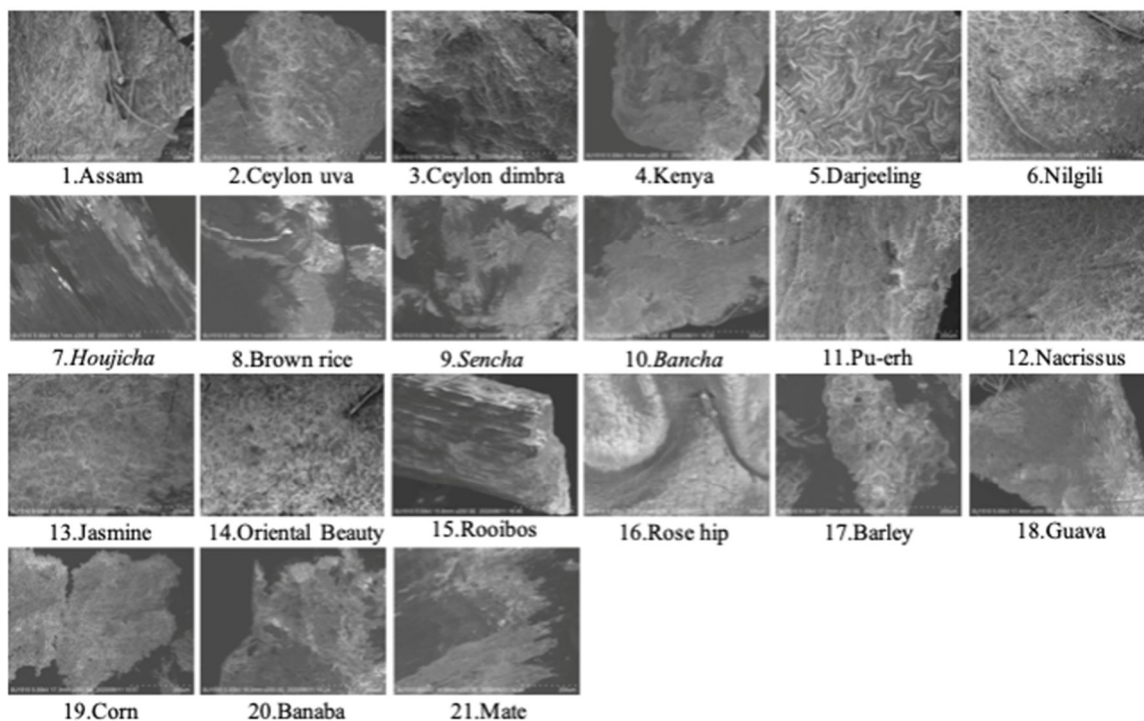


Fig.1 SEM images of tea leaves

また、染料吸着での結果を一例として下図に示した(Characteristics of 21 Types of Tea Waste for Adsorbance of Ionic Dyes from Aqueous Solutions, Chemical and Pharmaceutical Bulletin, Vol.70, 254-260, 2022 より抜粋)。

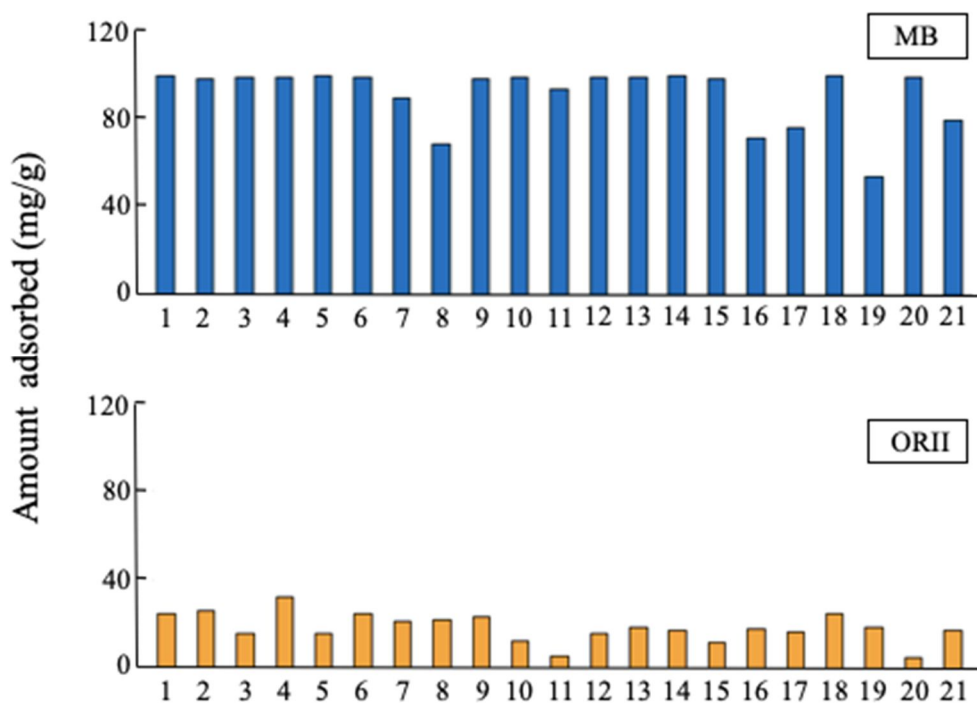


Fig.2 Amount of methylene Blue or Acid Orange ' adsorbed on tea leaves

詳細な解析結果については、学会および論文として報告した。これらの研究成果は、学術的に新たな知見であるだけでなく、実用化を志向した検討結果を含むため、社会的な貢献につながる可能性がある。その意義や活用方法については、本報告の別項にも記載した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

| | |
|---|-----------------------|
| 1. 著者名 Takehiro Nakamura, Sayuri Mishima, Fumihiko Ogata, Naohito Kawasaki | 4. 巻 70 |
| 2. 論文標題 Characteristics of 21 Types of Tea Waste for Adsorbance of Ionic Dyes from Aqueous Solutions | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Chemical and Pharmaceutical Bulletin | 6. 最初と最後の頁 254-260 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1248/cpb.c21-00973 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

〔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 中村武浩, 三島早由合, 藤本月音, 緒方文彦, 川崎直人 |
| 2. 発表標題 21種類の茶粕による排水中染料および有害金属の除去 |
| 3. 学会等名 フォーラム2020 衛生薬学・環境トキシコロジー |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名 中村武浩, 三島早百里, 緒方文彦, 川崎直人 |
| 2. 発表標題 有機資源廃棄物である茶粕による排水中染料の除去 |
| 3. 学会等名 第69回日本薬学会関西支部総会・大会 |
| 4. 発表年 2019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 |
|---------|---------|
|---------|---------|