

DOI: 10.12161/j.issn.1005-6521.2021.20.006

锆改性沸石对蔗糖溶液中没食子酸的 吸附性能研究

柳富杰, 霍艳菊, 韦巧艳, 李大成, 周永升*

(广西科技师范学院 食品与生化工程学院, 广西 来宾 546119)

摘要:为降低制糖过程中蔗汁中没食子酸的含量,降低白砂糖的色值,以氧氯化锆和沸石为原料,通过共沉淀法制备锆改性沸石,研究改性前后沸石表面结构和基团的变化,考察时间、pH值、温度及没食子酸初始浓度等因素对改性沸石吸附蔗糖溶液中没食子酸的吸附效果的影响,并对吸附动力学模型、吸附等温模型和吸附热力学进行初步探讨。扫描电镜结果显示锆改性后沸石表面更加粗糙,红外光谱显示改性后沸石基团发生了改变,氧化锆成功的负载到改性沸石上。吸附试验结果表明锆改性沸石对没食子酸吸附量达到 34.442 mg/g。改性沸石对蔗糖溶液中没食子酸吸附的最佳 pH 值为 8.0,时间为 600 min,吸附温度及没食子酸初始浓度的提高有利于提高吸附效果;吸附过程符合准二级吸附动力学模型和 Langmuir 等温吸附模型;通过热力学研究可知吸附过程为吸热过程,能自发进行。

关键词:沸石;氧化锆;没食子酸;吸附;蔗糖溶液

Adsorption of Gallic Acid from Sucrose Solution on Zirconium-modified Zeolite

LIU Fu-jie, HUO Yan-ju, WEI Qiao-yan, LI Da-cheng, ZHOU Yong-sheng*

(College of Food and Biochemical Engineering, Guangxi Science and Technology Normal University, Laibin 546199, Guangxi, China)

Abstract: In order to reduce the gallic acid content of sugarcane juice and the color value of white granulated sugar, zirconia-modified zeolite was prepared using a co-precipitation method with zirconia and zeolite as raw materials. The surface structure of zeolite and group changes before and after modification were studied, and the effects of time, pH, temperature, and initial gallic acid concentration on the adsorption of gallic acid from sucrose solution using the modified zeolite were investigated. In addition, adsorption kinetics, isotherm models, and thermodynamics were discussed. Scanning electron microscope observations revealed that the surface of the modified zeolite was rougher than that of the unmodified compound, and the infrared spectrum obtained indicated group changes in the modified zeolite and the successful loading of zirconia. The adsorption capacity of zirconium-modified zeolite for gallic acid was found to be 34.442 mg/g, whereas the optimum pH and time for modified zeolite adsorption of gallic acid from sucrose solution were 8.0 and 600 min, respectively. Furthermore, it was found that increasing the adsorption temperature and initial concentration of gallic acid was beneficial with respect to enhancing the adsorption effect, and that the adsorption process could be described in terms of quasi-second-order adsorption kinetic and Langmuir isothermal adsorption models, whereas thermodynamic analysis revealed that the adsorption process was endothermic and could be spontaneous.

Key words: zeolite; zirconia; gallic acid; adsorption; sucrose solution

基金项目:广西糖资源工程技术研究中心培育建设(桂科 AD16450040);广西高校制糖工程综合技术重点实验室培育建设(桂教科研[2016]6号);广西高校中青年教师基础能力提升项目(2021KY0863)

作者简介:柳富杰(1990—),男(汉),讲师,硕士研究生,研究方向:糖资源功能开发与综合利用。

*通信作者:周永升(1991—),男(汉),讲师,硕士研究生,研究方向:糖资源功能开发与综合利用。

引文格式:

柳富杰,霍艳菊,韦巧艳,等. 锆改性沸石对蔗糖溶液中没食子酸的吸附性能研究[J]. 食品研究与开发, 2021, 42(20): 35-41.

LIU Fujie, HUO Yanju, WEI Qiaoyan, et al. Adsorption of Gallic Acid from Sucrose Solution on Zirconium-modified Zeolite[J]. Food Research and Development, 2021, 42(20): 35-41.

甘蔗制糖的原材料甘蔗中存在大量的酚类物质^[1], 这些酚类物质随着制糖过程进入蔗汁中, 在后续的工序中在酶的催化下通过一系列的化学反应生成醌类等深色物^[2], 最终会造成甘蔗制糖的产品——白砂糖的色值升高。目前甘蔗制糖生产中主要在澄清工序中除去酚类色素、蛋白质等非糖分, 90%以上的甘蔗糖厂采用的是亚硫酸法澄清工艺, 澄清剂为亚硫酸和石灰^[3]。但是亚硫酸法澄清效果有限, 只能除去约 1/3 的酚类色素^[2], 且容易造成硫的残留, 对白砂糖的品质产生影响, 使得其产品难以满足医药、特殊食品等行业的需求。因此, 开发新型澄清剂成为近年来制糖行业的研究热点。

沸石是常用的吸附剂之一, 由于其具有比表面积大和良好的离子交换能力^[4], 常用于处理水中污染物。近年来有研究发现锆改性沸石可以增强其吸附能力, 改性后的沸石可以有效地吸附水中的磷^[5]。而且锆改性沸石中的活性成分氧化锆具有化学性质稳定、对环境友好的特点, 对水中的污染物有较好的吸附能力, 是一种很有应用前景的澄清剂^[6]。但是沸石及其衍生物在蔗汁澄清中的研究较少, 所以有必要对锆改性沸石在蔗汁中的澄清的应用展开研究。

由于蔗汁成分复杂, 难以对澄清机理进行系统地研究, 而没食子酸是蔗汁中的主要酚类色素物质之一, 为了消除其他成分的干扰, 本文采用没食子酸和蔗糖溶液构成的模拟蔗汁体系^[7]用于相关的研究。以氧化锆为前驱体, 通过共沉淀法制备锆改性沸石^[7], 并研究其对模拟蔗汁中没食子酸的吸附机理, 为去除蔗汁中酚类色素提供数据支持和一定的理论指导。

1 材料与方法

1.1 材料与仪器

氧化锆八水合物(纯度>98%): 上海麦克林生化科技有限公司; 没食子酸(纯度>97%): 阿达玛斯(adamas)试剂有限公司; 白砂糖(一级): 市售; 福林酚: 西亚试剂有限公司; 氢氧化钠(化学纯)、沸石(分析纯): 大茂化学试剂有限公司; 盐酸(化学纯): 国药集团化学试剂有限公司。

722S 型可见光分光光度计: 上海仪电分析仪器有

限公司; PHS-3C 型 pH 计: 上海智光仪器仪表有限公司; TS-100B 型台式恒温振荡器: 常州光启试验仪器有限公司; IRAffinity-1s 型傅里叶红外光谱仪: 日本岛津企业管理(中国)有限公司; SU8010 型扫描电子显微镜: 日本日立科技有限公司。

1.2 试验方法

1.2.1 吸附材料的制备

在 100 mL 蒸馏水中加入 10 g 沸石搅拌 10 min, 缓慢加入 4.8 g 的氧化锆, 搅拌 2 h, 以 1 mol/L NaOH 溶液调节 pH 值至 10 后 25 °C 下静置老化 22 h。结束后过滤并以蒸馏水洗至中性, 最后转移至烘箱, 60 °C 烘干得到锆改性沸石。

1.2.2 没食子酸含量的测定

用分析天平准确称取(0.110±0.001) g 一水合没食子酸, 以 12% 蔗糖溶液定容至 100 mL, 配制成 1 000 μg/mL 没食子酸标准溶液。分别移取 1.0、2.0、3.0、4.0、5.0 mL 没食子酸标准溶液至 100 mL 容量瓶, 以 12% 蔗糖溶液定容至 100 mL, 摇匀, 配制成 10、20、30、40、50 μg/mL 的没食子酸溶液。

用移液管分别移取不同浓度的没食子酸溶液、12% 蔗糖溶液(作空白对照用)和待测液各 1 mL 于试管中, 在每个试管中分别加入 5.0 mL 10% 的福林酚试剂, 摇匀反应 3 min ~ 8 min, 加入 4.0 mL 7.5% 的碳酸钠溶液, 摇匀。25 °C 下放置 60 min。用 10 mm 比色皿, 在 765 nm 波长下用分光光度计测定吸光度^[8], 得到没食子酸标准曲线。

1.2.3 pH 值对没食子酸吸附性能的影响

移取不同 pH 值(5.0、6.0、7.0、8.0 和 9.0)、浓度为 30 mg/L 没食子酸蔗糖溶液(蔗糖浓度为 12%) 30 mL, 加入至带胶塞锥形瓶中。分别加入 0.03 g 改性沸石, 于恒温水浴振荡器中设置温度为 30 °C, 振荡频率为 200 r/min, 恒温振荡 180 min, 每个 pH 值做 3 组平行试验。振荡结束后取出锥形瓶并以滤纸过滤得到滤液, 取滤液测定吸光度后按式(1)计算吸附容量, 按照式(2)计算吸附率。

$$q = \frac{V(C_0 - C)}{m} \quad (1)$$

$$R/\% = \frac{C_0 - C}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

式中: C_0 为吸附前没食子酸初始浓度,mg/L; C 为吸附后没食子酸初始浓度,mg/L; q 为吸附剂对没食子酸的吸附量,mg/g; R 为吸附剂对没食子酸的吸附率,%; V 为加入的没食子酸蔗糖溶液的体积,L; m 为所加入吸附剂的质量,g。

1.2.4 吸附时间对没食子酸吸附性能的影响

配制 30、40、50 mg/L 的没食子酸蔗糖溶液,调节 pH 值至 8.0。移取 30 mL 没食子酸蔗糖溶液至带胶塞锥形瓶中,加入 0.03 g 改性沸石,于恒温水浴振荡器中设置温度为 30 ℃,振荡频率为 200 r/min,恒温振荡 10、20、30、40、50、70、90、120、180、240、360、480、600、720 min,每个时间值做 3 组平行试验。振荡结束后取出锥形瓶并以滤纸过滤得到滤液,取滤液按 1.2.3 方法测定其没食子酸剩余含量。

1.2.5 初始浓度和吸附温度对没食子酸吸附性能的影响

配制没食子酸蔗糖溶液浓度分别为 20、30、40、50、60、70 mg/L,调节 pH 值至 8.0。移取不同浓度 30 mL 的没食子酸蔗糖溶液至带胶塞锥形瓶中,加入 0.03 g 改性沸石,于恒温水浴振荡器中设置温度为 30、40、50 ℃,振荡频率为 200 r/min,恒温振荡 600 min,每个浓度做 3 组平行试验。振荡结束后取出锥形瓶并以滤纸过滤得到滤液,取滤液测定其没食子酸含量。

1.2.6 沸石和锆改性沸石表面微观形貌表征

对沸石和锆改性沸石材料在进行喷金操作后通过扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)在不同放大倍数下观测其表面微观结构。

1.2.7 沸石和锆改性沸石红外光谱表征

对沸石和锆改性沸石材料在利用 KBr 压片后通过红外光谱仪在 4 000 cm^{-1} ~400 cm^{-1} 范围内对样品结构进行表征。

1.3 数据处理

每个样品设置 3 个平行样测定和分析,采用 Originpro 2018 和 SPSS18.0 软件进行数据分析,测定结果以平均值和其标准差进行表示。

2 结果与分析

2.1 pH 值对没食子酸吸附性能的影响

吸附过程中溶液的 pH 值对于吸附量有很大的影响,是影响吸附效果的重要因素之一^[9]。由于蔗糖溶液在 pH 值低于 5.0 的条件下,会迅速地水解成葡萄糖和果糖,没食子酸在 pH 值较高的条件下其颜色会产生变化^[1],所以试验过程选择 pH 值的范围为 5.0~9.0。pH 值对没食子酸吸附性能的影响见图 1。

如图 1 所示,pH 值从 5.0 升高到 8.0 过程中,改性

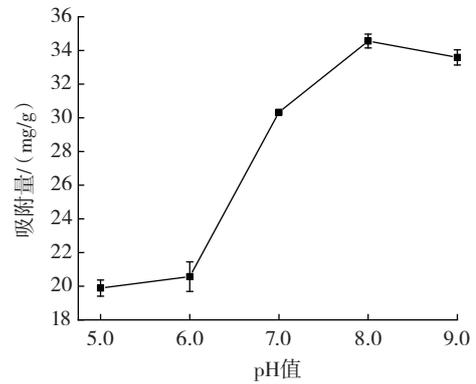


图 1 pH 值对没食子酸吸附性能的影响

Fig.1 Effect of pH value on gallic acid adsorption performance

沸石对没食子酸的吸附性能逐步提升,到 8.0 达到最大;从 8.0 继续提高 pH 值,吸附量下降。这可能是因为 pH 值上升的过程中,没食子酸的-COOH 逐渐解离 H^+ ,变成带负电的 $-\text{COO}^{-[10]}$,改性沸石表面带正电,静电吸附增强,所以吸附量提高;当 pH 值提高到 9.0,改性沸石可能呈现电中性,吸附能力下降,所以后续吸附试验选择 pH 值为 8.0。

2.2 吸附时间对没食子酸吸附性能的影响

吸附时间对没食子酸吸附性能的影响见图 2。

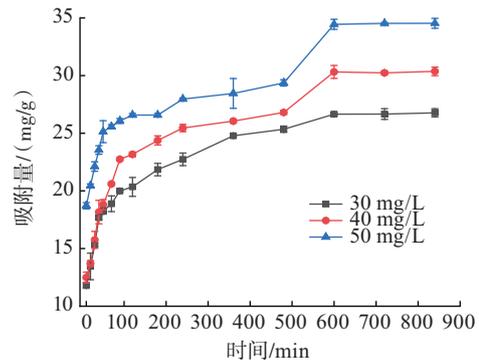


图 2 吸附时间对没食子酸吸附性能的影响

Fig.2 Effect of adsorption time on gallic acid adsorption performance

由图 2 可知,在前 120 min 吸附量增长速率较快,吸附曲线较陡,这是因为在吸附初期一方面没食子酸浓度较高,另一方面改性沸石表面吸附位点较多,吸附动力克服传质阻力,所以吸附容量增长速度较快^[11]。吸附时间在 120 min~600 min 之间由于没食子酸已经被部分吸附,其浓度较少,静电吸引力降低,改性沸石表面吸附位点数量减少,吸附剂吸附能力下降,所以吸附容量增长速度下降^[12]。600 min 后达到吸附平衡状态,继续延长吸附时间,吸附量不变,在没食子酸浓度为 50 mg/L,吸附时间达到 600 min 时吸附量最大(34.442 mg/g)。

2.3 吸附温度和吸附浓度对没食子酸吸附性能的影响
吸附温度和吸附浓度对没食子酸吸附性能的影响见图3。

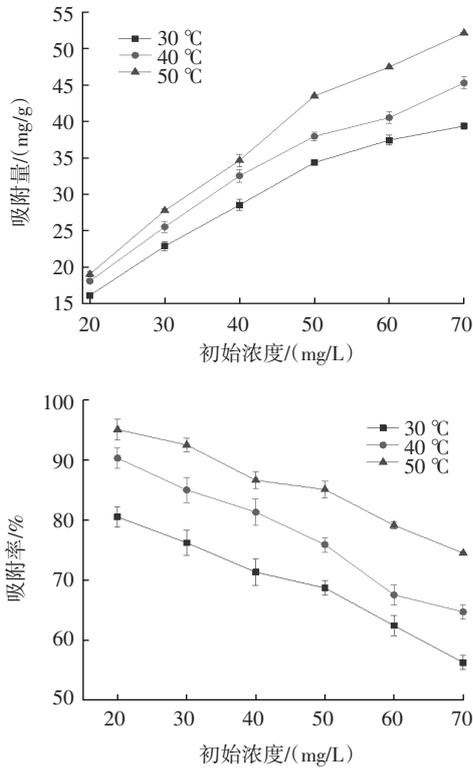


图3 吸附温度和吸附浓度对没食子酸吸附性能的影响

Fig.3 Effect of adsorption temperature and concentration on gallic acid adsorption performance

如图3所示,温度为30℃时,没食子酸浓度从20 mg/L提高到70 mg/L时,吸附容量从16.11 mg/g提高到39.37 mg/g,吸附率从80.53%降低到56.24%,这是因为在低浓度的条件下,吸附剂存在大量吸附位点有效地吸附了没食子酸,所以低浓度的没食子酸溶液吸附率较高。随着没食子酸浓度提高,吸附位点逐渐被没食子酸占据,空余吸附位点减少,所以在提高没食子酸浓度的情况下,吸附率降低,吸附容量提高。由图3可知,提高吸附温度可以提高吸附量和吸附率,这是因为温度的提高可以促进没食子酸的电离,提高其电负性增强静电吸引力;另一方面提高温度可以加快没食子酸分子的运动速度,更好的克服传质阻力^[1],促进改性沸石对没食子酸的吸附。

2.4 吸附动力学研究

通过吸附动力学进一步探讨改性沸石对没食子酸的吸附机理,拟合的模型方程式为式(3)准一级动力学模型、式(4)准二级动力学模型和式(5)颗粒内扩散模型。

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \quad (3)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (4)$$

$$q_t = k_d t^{1/2} + c \quad (5)$$

式中: q_t 为时间 t (min)时刻的吸附量,mg/g; q_e 为平衡时吸附量,mg/g; k_1 为准一级动力学吸附速率常数, min^{-1} ; k_2 为准二级动力学吸附速率常数, $\text{g}/(\text{mg} \cdot \text{min})$; k_d 为颗粒内扩散速率常数, $\text{mg}/(\text{g} \cdot \text{min}^{1/2})$; c 为边界层的厚度。

在温度为30℃,设置的吸附条件为没食子酸蔗糖溶液体积30 mL,浓度为30 mg/L~50 mg/L,添加改性沸石质量为0.03 g,吸附时间为720 min,所得试验数据经过计算和拟合,得到图4的准一级动力学方程和准二级动力学方程拟合图,图5为颗粒内扩散动力学拟合图,表1为拟合参数。

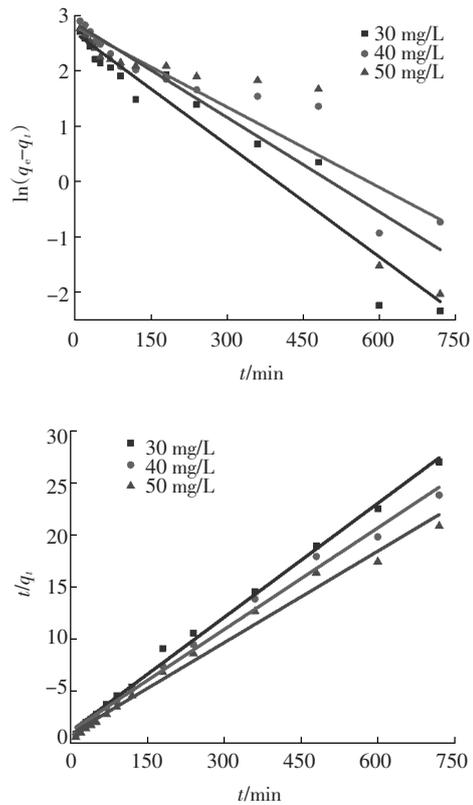


图4 准一级和准二级动力学方程拟合

Fig.4 Fitting of quasi first order and quasi second order kinetic equations

没食子酸在改性沸石上的吸附分为3个阶段:外扩散、内扩散和表面吸附。通过颗粒内扩散吸附动力学模型的探索影响吸附速率的因素。从图5可知吸附分为两个阶段,吸附初期,吸附速度较快,吸附一段时间后吸附速率变慢,显示出拟合模型为偏离远点的多层次线性关系,结果表明,孔隙扩散不是影响吸附速率的唯一因素^[1]。

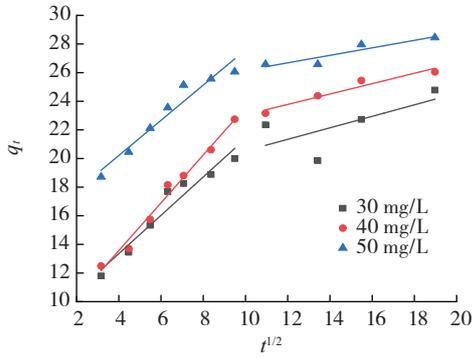


图5 颗粒内扩散动力学方程拟合

Fig.5 Fitting of kinetic equation of dispersion in particles

如表1所示准二级动力学方程拟合的平衡吸附量 q_e 相较于准一级动力学方程拟合的 q_e 更加接近实际值 q_e ,且准二级动力学相关系数 ($R^2 > 0.98$) 大于准一级,因此,准二级动力学模型可以更好地解释没食子酸在改性沸石上的吸附机理,吸附过程同时存在着化学吸附和物理吸附。

2.5 等温吸附线研究

通过等温吸附线模型拟合对吸附过程中的吸附容量与平衡浓度进行描述,进而分析改性沸石的吸附特性。本文拟合的等温吸附方程式为式(6)Langmuir 等温吸附方程和式(7)Freundlich 等温吸附方程。

表1 吸附动力学方程拟合参数

Table 1 Fitting parameters of adsorption kinetic equation

浓度/ (mg/L)	实际值 q_e / (mg/g)	准一级动力学			准二级动力学			颗粒内扩散	
		k_1	$q_e/(mg/g)$	R^2	k_2	$q_e/(mg/g)$	R^2	k_d	R^2
30	26.76	0.006 7	14.68	0.930 7	1.202×10^{-3}	27.40	0.996 1	0.573	0.880 4
40	30.71	0.004 8	16.40	0.897 2	9.52×10^{-4}	30.67	0.993 9	0.691	0.892 6
50	34.66	0.005 7	17.57	0.808 1	1.036×10^{-3}	34.13	0.987 6	0.556	0.901 7

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{q_m} + \frac{1}{q_m k_L} \quad (6)$$

$$\ln q_e = \ln k_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (7)$$

式中: C_e 为改性沸石吸附没食子酸达到平衡时吸附质的浓度,mg/g; q_m 为改性沸石对没食子酸的吸附

达到饱和时的吸附量,mg/g; q_e 为改性沸石对没食子酸的吸附平衡时的吸附量,mg/g; k_L 为Langmuir 方程式的常数; k_F 为Freundlich 方程式的常数; $1/n$ 为Freundlich 方程式的特征常数。通过2.3的试验数据进行拟合,拟合结果见表2。

表2 等温吸附线拟合参数

Table 2 Fitting parameters of isotherm adsorption line

温度/℃	Langmuir			Freundlich		
	k_L	q_m	相关系数 R^2	k_F	n	相关系数 R^2
30	0.119	50.76	0.996 9	9.490	2.250	0.969 2
40	0.236	51.55	0.994 1	16.899	2.827	0.978 7
50	0.382	58.82	0.990 9	17.892	2.884	0.968 5

由表2可知不同温度下Langmuir 等温吸附线拟合的相关系数 ($R^2 > 0.99$) 均大于 Freundlich 等温吸附线拟合的相关系数,Langmuir 等温吸附线可以更准确地描述改性沸石对没食子酸的吸附过程。改性沸石对没食子酸的吸附属于单分子层吸附,不同温度下均有 $0 < k_L < 1$ 的规律,吸附过程属于优惠吸附^[3]。根据Langmuir等温吸附方程拟合参数可知在30℃下最大吸附量为50.76 mg/g;在40℃下最大吸附量为51.55 mg/g;在50℃下最大吸附量为58.82 mg/g。这说明在30℃~50℃,提高温度可以提高没食子酸在改性沸石上的最大吸附量。参数中的n值越大,说明吸附性能越好^[1],50℃下的n值最大,说明50℃下吸附性能最好,这与试验结果相符合。

2.6 吸附热力学研究

对吸附过程进行热力研究可以进一步探索吸附

的机理,确定吸附过程是自发还是非自发。研究采用的方程式见式(8)、(9)和(10)。

$$k_L = \frac{q_e}{C_e} \quad (8)$$

$$\Delta G = -RT \ln k_L \quad (9)$$

$$\ln k_L = \frac{\Delta S}{R} - \frac{\Delta H}{RT} \quad (10)$$

式中: k_L 为Langmuir 方程热力学常数,L/mol; T 为热力学温度,K; R 为热力学常数,8.314 J/(mol·K); ΔG 为吉布斯自由能,kJ/mol; ΔH 为焓变,kJ/mol; ΔS 为熵变,J/(mol·K)。

使用2.3的试验数据进行热力学方程拟合,结果见表3。

由表3可知 ΔG 在试验中为负值,说明吸附过程为自发进行的反应^[1]。随着温度提高, ΔG 从-1.978 kJ/mol 降低到-5.107 kJ/mol,呈现减小的趋势,说明提高温度

表3 吸附热力学方程拟合参数

Table 3 Fitting parameters of adsorption thermodynamic equation

T/K	$\Delta G/(\text{kJ/mol})$	$\Delta H/(\text{kJ/mol})$	$\Delta S/[\text{J}/(\text{mol}\cdot\text{K})]$
303	-1.978	45.260	155.264
313	-2.987		
323	-5.107		

可以增强改性沸石对没食子酸的吸附能力,有利于吸附的进行^[14]。 $\Delta H > 0$,说明吸附是一个吸热过程,提高温度有利于改性沸石对没食子酸的吸附^[13]。 $\Delta S > 0$,表明没食子酸和改性沸石二者的吸附液界面的吸附存在随机性^[1]。

2.7 红外光谱表征

通过红外光谱对沸石和氧化锆改性沸石进行表征,探索改性前后沸石基团的变化,表征结果见图6。

2 930 cm^{-1} 为 $-\text{CH}_3$ 和 $-\text{CH}_2$ 上的C-H伸缩振动峰,改性后振动减弱^[15];950 cm^{-1} ~1 200 cm^{-1} 上的吸收峰与Si-O和Al-O伸缩振动有关;1 632 cm^{-1} 和3 421 cm^{-1} 吸收峰上是羟基伸缩作用峰^[16-17],改性后羟基吸收峰增强。这些变化表明锆氧化物在改性后成功嵌入沸石

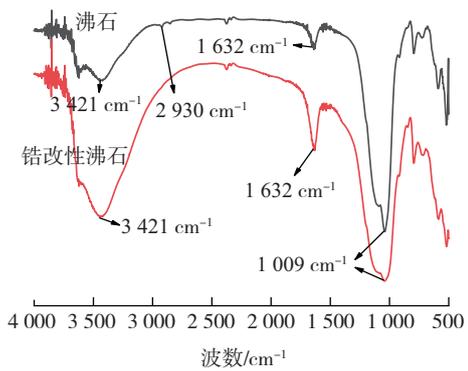


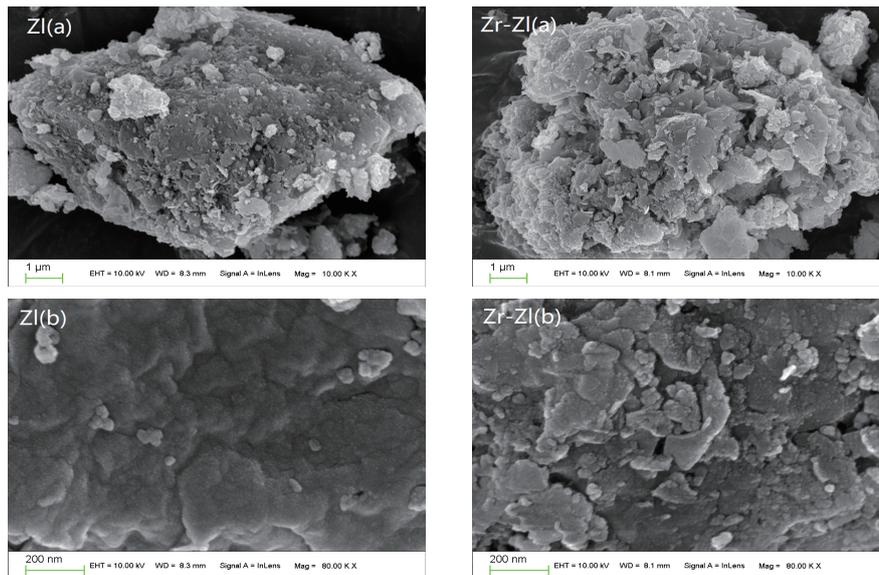
图6 沸石与改性沸石的红外光谱图

Fig.6 Infrared spectrum of zeolites and modified zeolites

中。锆氧化物的吸附机理是依靠其表面的羟基进行阴离子配位体的交换,改性后沸石的羟基的增强有利于提高其对蔗糖溶液中没食子酸的吸附能力,这与本文结果相符。

2.8 SEM 表征

通过扫描电镜(SEM)对沸石(zeolite, ZI)和锆改性沸石(Zr-ZI)的表面形态进行观察,结果见图7。



(a)、(b)表示放大不同倍数。

图7 沸石(ZI)和锆改性沸石(Zr-ZI)的SEM图

Fig.7 SEM of zeolite (ZI) and zirconium modified zeolite (Zr-ZI)

由图7ZI(a)和图7ZI(b)可知,未改性的沸石表面较为光滑平整,表面纳米小颗粒较少。改性后沸石表面形态见图7Zr-ZI(a)和图7Zr-ZI(b),相较未改性的沸石,改性后表面粗糙不平,纳米小颗粒数量增多。结合红外结果可知其表面增多的纳米颗粒是锆氧化物,锆氧化物以纳米颗粒形态存在于沸石上,一方面增大沸石的比表面积,有利于增强沸石的物理吸附效果;另一方面沸石上锆氧化物在吸附过程中吸附机制主要

是阴离子配位体的交换^[18],没食子酸在中性蔗糖溶液中主要以阴离子形态存在^[19],锆氧化物的成功接入可以增强改性沸石对没食子酸的吸附效果。

3 结论

没食子酸等酚类物质为制糖过程中糖汁中的色素物质,其存在使得制糖产品白砂糖的色值提高,是制糖工业务必要有效解决的问题。本试验以氢氧化锆和沸

石为原料,通过共沉淀法制备锆改性沸石,使用扫描电镜和红外光谱对改性沸石进行了表征,并以锆改性沸石对蔗糖溶液中的没食子酸进行了吸附研究。扫描电镜结果显示锆改性沸石相较沸石表面更加粗糙,红外光谱显示改性后复合材料基团发生了改变,氧化锆成功地负载到了沸石上。吸附试验表明锆改性可以提高沸石对没食子酸的吸附能力,改性后在浓度为 50 mg/L 的没食子酸蔗糖溶液中吸附量达到了 34.442 mg/g,吸附能力大幅度提高。改性沸石对蔗糖溶液中没食子酸吸附的最佳 pH 值为 8.0, 时间为 600 min; 吸附过程可以用准二级吸附动力学方程和 Langmuir 等温吸附模型进行描述;通过热力学研究可知吸附过程为吸热过程,能自发进行。本研究对于改性沸石吸附处理蔗糖溶液中的没食子酸具有一定的实际意义。

参考文献:

- [1] SONG X R, CHAI Z H, ZHU Y, et al. Preparation and characterization of magnetic chitosan-modified diatomite for the removal of Gallic acid and caffeic acid from sugar solution[J]. Carbohydrate Polymers, 2019, 219: 316-327.
- [2] 何惠欢, 梁贤慧, 陆登俊. 蔗汁澄清过程各种酚类含量变化的研究[J]. 食品科技, 2015, 40(5): 105-109.
HE Huihuan, LIANG Xianhui, LU Dengjun. Changes of phenols content in cane juice clarification process[J]. Food Science and Technology, 2015, 40(5): 105-109.
- [3] 任勤, 张佳欣, 雷财玉, 等. 壳聚糖及其衍生物在糖汁澄清过程中的研究进展[J]. 中国调味品, 2017, 42(4): 159-162.
REN Qin, ZHANG Jiayin, LEI Caiyu, et al. Research progress of chitosan and its derivative in the process of sugar juice clarification [J]. China Condiment, 2017, 42(4): 159-162.
- [4] 王静, 孙美乔. 壳聚糖改性沸石吸附性能的影响因素研究[J]. 供水技术, 2019, 13(2): 6-9.
WANG Jing, SUN Meiqiao. Influencing factors of adsorption properties of modified zeolite by chitosan[J]. Water Technology, 2019, 13(2): 6-9.
- [5] YANG M J, LIN J W, ZHAN Y H, et al. Immobilization of phosphorus from water and sediment using zirconium-modified zeolites[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, 22(5): 3606-3619.
- [6] LIN J W, HE S Q, ZHANG H H, et al. Effect of zirconium-modified zeolite addition on phosphorus mobilization in sediments[J]. Science of the Total Environment, 2019, 646: 144-157.
- [7] LIN J W, WANG H, ZHAN Y H, et al. Evaluation of sediment amendment with zirconium-reacted bentonite to control phosphorus release[J]. Environmental Earth Sciences, 2016, 75(11): 1-17.
- [8] 周友全, 唐婷范, 程昊, 等. 壳聚糖对蔗糖溶液中单宁酸的吸附性能研究[J]. 食品工业科技, 2020, 41(3): 12-15, 21.
ZHOU Youquan, TANG Tingfan, CHENG Hao, et al. Study on adsorption properties of chitosan for tannic acid in sucrose solution[J]. Science and Technology of Food Industry, 2020, 41(3): 12-15, 21.
- [9] ZOU Y H, ZHANG R Y, WANG L Y, et al. Strong adsorption of phosphate from aqueous solution by zirconium-loaded Ca-montmorillonite[J]. Applied Clay Science, 2020, 192: 105638.
- [10] AHMAT A M, THIEBAULT T, GUÉGAN R. Phenolic acids interactions with clay minerals: a spotlight on the adsorption mechanisms of Gallic Acid onto montmorillonite[J]. Applied Clay Science, 2019, 180: 105188.
- [11] CHEN J, YAN L G, YU H Q, et al. Efficient removal of phosphate by facile prepared magnetic diatomite and illite clay from aqueous solution[J]. Chemical Engineering Journal, 2016, 287: 162-172.
- [12] 张婉婷, 吴桂萍, 崔龙哲. 磁性壳聚糖的制备及吸附靛蓝胭脂红的性能评价[J]. 环境科学与技术, 2017, 40(4): 19-23, 44.
ZHANG Wanting, WU Guiping, CUI Longzhe. Synthesis of mercapto functional Fe₃O₄-chitosan and its absorption of anionic dye[J]. Environmental Science & Technology, 2017, 40(4): 19-23, 44.
- [13] 吴春, 孙天一, 马琳. 改性磁性壳聚糖对胭脂红的吸附性能评价[J]. 食品工业科技, 2020, 41(1): 25-31, 37.
WU Chun, SUN Tianyi, MA Lin. Evaluation of adsorption property of modified magnetic chitosan to carmine[J]. Science and Technology of Food Industry, 2020, 41(1): 25-31, 37.
- [14] 杨琴淋, 施文健, 张晓东. 交联壳聚糖微球对表面活性剂的吸附性能研究[J]. 功能材料, 2019, 50(7): 7120-7125.
YANG Qinlin, SHI Wenjian, ZHANG Xiaodong. Studies on the adsorption properties of crosslinked chitosan microspheres for anionic surfactants[J]. Journal of Functional Materials, 2019, 50(7): 7120-7125.
- [15] WANG G F, XU J, SUN Z M, et al. Surface functionalization of montmorillonite with chitosan and the role of surface properties on its adsorptive performance: a comparative study on mycotoxins adsorption[J]. Langmuir, 2020, 36(10): 2601-2611.
- [16] DUAN P J, XU X, SHANG Y N, et al. Amine-crosslinked Shaddock Peel embedded with Hydrous zirconium oxide nano-particles for selective phosphate removal in competitive condition[J]. Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers, 2017, 80: 650-662.
- [17] TAN J, WANG Y F, LIU N, et al. Adsorption of uranium (VI) from aqueous solution by tetraphenylimidodiphosphate[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2018, 315(2): 119-126.
- [18] ASWIN KUMAR I, VISWANATHAN N. Fabrication of zirconium (IV) cross-linked alginate/Kaolin hybrid beads for nitrate and phosphate retention[J]. Arabian Journal of Chemistry, 2020, 13(2): 4111-4125.
- [19] FAN S L, HUANG Z Q, ZHANG Y J, et al. Magnetic chitosan-hydroxyapatite composite microspheres: Preparation, characterization, and application for the adsorption of phenolic substances[J]. Bioresource Technology, 2019, 274: 48-55.