

論文の内容の要旨

論文題目 「光触媒反応による微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の無害化に関する研究」

学位申請者 三澤 和洋

キーワード：光触媒反応、大気汚染、無害化、活性酸素、環境教育

微小粒子状物質 (Particulate Matter 2.5、以下 PM_{2.5} と略記する) は、空気中に浮遊する固体または液体のうち、粒径 2.5 μm の粒子を 50%除去する装置を通過した粒子を指す。

PM_{2.5} は、自然および人為的発生源に由来する粒子の混合物であり、その大気中濃度、物理・化学的性状および有害性等は、各発生源からの寄与に応じて複雑かつ多様に変化する。主たる構成成分は、炭素成分 (有機炭素 (Organic carbon, OC), 元素状炭素 (Elemental Carbon, EC))、水溶性塩類 (硫酸塩、硝酸塩)、金属酸化物 (Al, Si, Fe 等の酸化物) などである。これらのなかで、ヒトの健康に関わる主な毒性成分は OC や EC であると考えられている。特に循環器疾患の発症には OC に分類されるキノン類 (酸化還元活性物質) の関与が示唆されており、キノン類が肺から血液を通じて細胞内に侵入して活性酸素 (Reactive Oxygen Species, ROS) の生成を促進し、この ROS によって惹起される酸化ストレスが健康被害をもたらす可能性が指摘されている。呼吸に伴って吸入されると細気管支や肺胞に沈着し、さらにその一部の成分は血液に移行して循環し、全身または局所に酸化ストレスを与えると考えられている。

PM_{2.5} による大気汚染を防ぐには、その汚染メカニズムを明らかにし、発生源において排出抑制を図るのが基本原則である。しかしながら、PM_{2.5} の発生源は多種多様であり、発生施設の同定が困難な場合が多い。したがって PM_{2.5} に起因する健康リスクを低減するには、即効性のある対策技術も必要であり、個人レベルで利用可能なマスクや空気清浄機などの需要が高まっている。マスクや空気清浄機は、ろ過技術を基礎とする粒子の除去技術であり、従来はハウスダストや花粉などを除去対象にしてきたが、近年では PM_{2.5} に対応する製品も増えてきている。しかし、このようなろ過技術は、PM_{2.5} をフィルター表面に捕捉して濃縮するのみであり、積極的に分解して無害化を図るものではない。したがって、フィルター上に濃縮された PM_{2.5} の再飛散や接触による曝露リスクが存在することになる。

光半導体は、バンドギャップに相当する光を吸収すると伝導帯に励起電子、価電子帯に正孔を生成する。生成した励起電子および正孔は、光半導体に接触した物質に対して酸化・還元活性を示し、酸素分子 (O₂) からはスーパーオキシドアニオンラジカル (O₂^{·-})、水分子からヒドロキシラジカル (·OH) などの強力な酸化剤を生成することから、水や空気など

環境媒体中に存在する有害な有機化合物の分解に広く用いられている。この光半導体は目的物の分解反応において、触媒のような働きをすることから光触媒とも呼ばれている。光触媒反応はこれまで不均一系反応（気-固、液-固）において有害有機化合物の分解に利用されてきたが、固体を対象とする均一系反応での適用例は少なく、PM_{2.5}に対する適用例はなかった。そこで本研究では、空气中 PM_{2.5} の曝露に起因する健康リスクの低減に寄与する環境浄化材料の開発を意図し、光触媒反応により PM_{2.5} に含まれる炭素成分を分解して無害化する技術を確立することを目的とした。

まず、PM_{2.5} のろ過材である石英繊維製フィルターにアナターゼ型酸化チタン (TiO₂) を担持して TiO₂ 担持フィルター（担持量：0.05 g/フィルター）を作製し、メチレンブルーおよびすすを対象に光触媒活性を確認した。次に神奈川県平塚市に所在する東海大学湘南校舎 17 号館屋上にて、ハイボリュームエアサンプラーに TiO₂ 担持フィルターを装着し、空気を 24 時間ろ過して PM_{2.5} を捕集した。捕集した PM_{2.5} 試料に紫外線（中心波長 365nm）を 1.1 mW/cm² で照射したところ、PM_{2.5} の重量は経時的に減少し、視覚的にも退色が認められた。一方、PM_{2.5} の重量減少に伴い、二酸化炭素の生成が認められた。炭素分析計を使用して PM_{2.5} 中の OC および EC を分析したところ、紫外線を照射した TiO₂ 担持フィルターは全炭素量の約 92% を占める OC1、OC2、OC3、OC4 および EC1 の各フラクションに対して活性を示した。ただし、元素状の EC2 および EC3 の分解は困難であった。これらのことから、光触媒反応で PM_{2.5} に含まれる炭素成分を分解できることが明らかとなり、PM_{2.5} の無害化に寄与する可能性が見出された。

次に、PM_{2.5} の ROS 産生能をジチオトレイトールアッセイにより評価し、光触媒反応による低減効果を調べた。その結果、採取した PM_{2.5} 試料の ROS 産生能は、紫外線照射前が 0.18~0.31 nmol min⁻¹ m⁻³ (n=9) であったのに対し、紫外線照射 3 日後は 0.088~0.19 nmol min⁻¹ m⁻³ (n=9) となり、有意に減少した (p=0.008)。ただし、ROS 産生能の減少は単調ではなく、一時的に増加して減少する傾向を示した。これは光触媒反応によるキノン類の分解と同時に、前駆物質の多環芳香族炭化水素からキノン類が生成したためと考えられ、ROS 産生能の低減を図るには、共存する多環芳香族炭化水素の影響も考慮する必要があることが示唆された。

一方、本研究で開発した PM_{2.5} の無害化技術を環境教育プログラムにおいて実践した。この環境教育プログラムは、科学技術振興機構さくらサイエンスプランの採択を受け、ソウル大学校師範大学附設高等学校の高校生を対象にして実施したものであり、高校生たちの科学や環境問題に対する興味関心を高め、大気汚染対策について自ら考え、行動するきっかけを作ることができた。

以上のことから、光触媒反応の利用により PM_{2.5} に含まれる炭素成分が分解でき、ROS 産生能に基づく有害性の低減が可能であることが明らかとなった。PM_{2.5} による大気汚染が世界的に問題となっている現在、本研究で開発した基礎技術が今後の PM_{2.5} 対策に応用されることが期待される。