

光触媒反応を用いた微小粒子状物質(PM_{2.5})中の多環芳香族炭化水素(PAHs)の分解

8BSKM004 蘓原 滉稀

指導教員 関根 嘉香

1. 緒言

微小粒子状物質(PM_{2.5})の健康影響が注目されており、PM_{2.5}中の成分の1つである多環芳香族炭化水素(PAHs)は発ガン性を持つことが知られている。PM_{2.5}への対策技術として防塵マスクや空気清浄器などのろ過技術が挙げられるが、ろ材への濃縮や再飛散のリスクがある。演者らの研究により、酸化チタン(TiO₂)を担持した石製繊維フィルターに紫外光(UV)を照射することにより、PM_{2.5}に含まれる炭素成分が分解することが明らかになった¹⁾。また、光触媒を用いた液-固反応でのPAHsの分解の研究は報告されているが、固-固反応での研究は報告例が少ない。

そこで本研究では、PM_{2.5}をTiO₂担持フィルター上に捕集し、UV照射に伴うPAHsの分解および挙動を検討した。

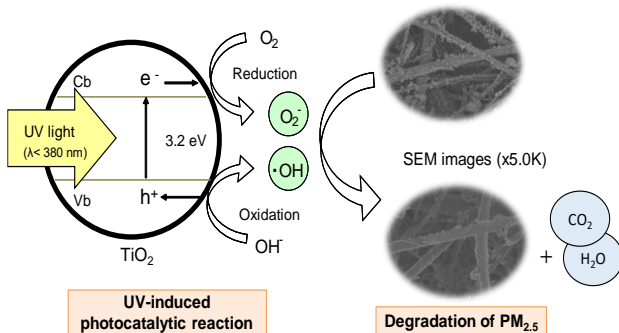


Fig.1 Schematic diagram of photocatalytic reaction

2. 方法

2.1 光触媒担持フィルターの作成

石英繊維製フィルター(アドバンテック東洋製,OR-100)を2%チタニウムテトライソプロポキシド/2-プロパノール溶液に1時間浸漬し、1時間乾燥後500°Cで2時間焼成し、TiO₂を担持したフィルターを作成した。TiO₂の担持量は0.05 g/filter、結晶型はアナターゼ型であった。TiO₂の担持量は、PM_{2.5}分粒装置付 Hi-Vol(柴田科学製,HV-500R)による通気時の圧力損失を考慮して決定した。

2.2 PM_{2.5}の捕集およびUVの照射

東海大学湘南校舎屋上において、光触媒担持フィルター及び石英繊維製フィルター上にPM_{2.5}分粒装置付 Hi-Volを用いてPM_{2.5}を捕集した。捕集後のフィルターをポンチで25 mm φにくり抜き、ブラックライトを用いて異なる時間でUV(365 nm, 1.1 mW/cm²)を照射した。



Fig.2 A device for UV-induced reaction

2.3 PAHsの測定

環境省のPAHs測定方法²⁾を参考に抽出作業を行った。UVを照射したフィルターにジクロロメタン10 mLを加え、20分間超音波抽出した後、10分間遠心分離機にかけた。遠心分離後の試料の上澄みを5 mL採取し、ジメチルスルホキシド30 μLを加え、窒素還流を行った。残留物にアセトニトリル470 μLを加え、ろ過した後、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)-蛍光検出器(島津製作所製,RF-20A)を用いて測定した。

本実験では、米国環境保護庁指定の16物質のうち、3環が2種(フェナントレン(Phe),アントラセン(Anth)),4環が3種(ピレン(Pry),クリセン(Chr),ベンゾ[a]アントラセン(B(a)A)),5環が4種(ベンゾ[k]フルオランテン(B(k)F),ベンゾ[b]フルオランテン(B(b)F),ベンゾ[a]ピレン(B(a)P),ジベンゾ[a,h]アントラセン(DB(ah)A)),6環が1種(ベンゾ[g,h,i]ペリレン(B(ghi)P))の合計10物質を対象に測定を行った。

3. 結果と考察

3.1 PAHs 分解の検討

PAHs 分解の確認のため、分析対象物質 10 種の PAHs 混合溶液(STD)を光触媒担持フィルター及び石英繊維製フィルターに添加し、UV を照射した。Fig.3 に PAHs の残留量の経時変化を示す。UV を照射すると残留量は著しく減少し、石英繊維製フィルターに比べ光触媒担持フィルターの方が減少率が高かった。このことより、PAHs が光触媒反応によって除去できることがわかった。

次に PM_{2.5} を捕集したフィルターに UV を照射した際の残留量の経時変化を Fig.4 に示す。PM_{2.5} 中からは B(a)A および DB(ah)A を除く 8 種類が確認された。STD 滴下実験と同様に残留量の減少が見られ、石英繊維製フィルターに比べ光触媒担持フィルターの PAHs は減少した。ただし、STD より減少速度は緩やかであり、減少率も低かった。

3.2 STD 及び PM_{2.5} 試料中 PAHs 分解挙動の比較

3.1 の結果から、STD と PM_{2.5} 試料で減少速度に違いが見られた。そこで、UV 照射に伴う PAHs の減少速度に及ぼす律速段階について調査した。Table1 に STD 中各 PAH の減少速度を示す。STD 中 PAHs の半減期は 0.036~0.61 h の間であり、物質間で速度定数に差があった。このことから、TiO₂ 上に PAHs を直接添加したことによる物性の違いを反映したことが推測される。

Table2 に PM_{2.5} 中各 PAH の減少速度を示す。STD に比べ半減期が 17~27 h と長く、物質間の速度定数の差が小さかった。これは PM_{2.5} の内部構造が関与していることが推測され、OH ラジカルの拡散速度が律速であることが示唆された。

4. 結論

光触媒による PM_{2.5} 中 PAHs 分解が確認された。また、PAHs の TiO₂ に対する接触の仕方の違いが、減少速度を律速することが示唆された。

5. 参考文献

- 1) Misawa K. et al., Environmental Technology, Published online: 09 Oct 2018
- 2) 環境省.,多環芳香族炭化水素測定方法 (HPLC 法及び GC-MS 法)

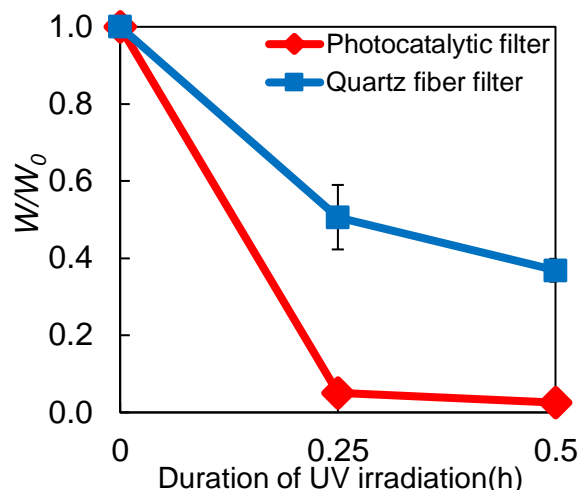


Fig.3 Variation of PAHs in STD during photo-degradation

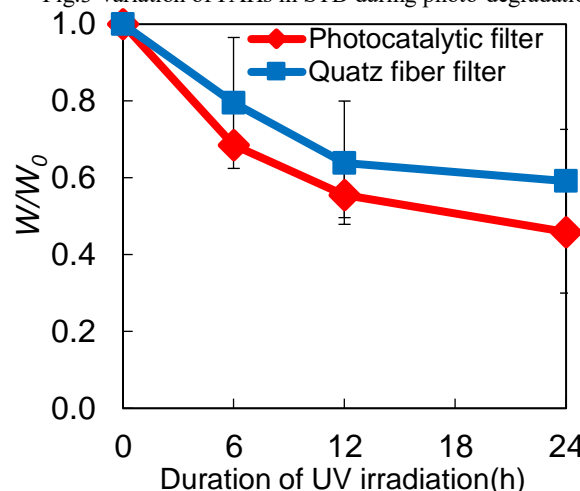


Fig.4 Variation of PAHs in PM_{2.5} during photo-degradation

Table1 The attenuation speed of PAH in STD during photo-degradation

	Phe	Ant	B(a)A	Pyr	Chr
速度定数(h ⁻¹)	-5.9	-19	-2.9	-3.7	-1.3
半減期(h)	0.12	0.036	0.24	0.19	0.54
	B(b)F	B(k)F	B(a)P	DB(ah)A	B(ghi)P
速度定数(h ⁻¹)	-1.5	-1.5	-3.9	-1.2	-1.4
半減期(h)	0.47	0.47	0.18	0.60	0.51

Table2 The attenuation speed of PAH in PM_{2.5} during photo-degradation

	Phe	Ant	B(a)A	Pyr	Chr
速度定数(h ⁻¹)	-0.031	-0.032	-	-0.033	-0.033
半減期(h)	23	22	-	21	21
	B(b)F	B(k)F	B(a)P	DB(ah)A	B(ghi)P
速度定数(h ⁻¹)	-0.026	-0.026	-0.028	-	-0.041
半減期(h)	26	27	25	-	17