

氏名(本籍)	劉 永 剛 (中 国)
学位の種類	博士(環境学)
学位記番号	博 甲 第 5770 号
学位授与年月日	平成 23 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審査研究科	生命環境科学研究科
学位論文題目	Study on Water Purification by Photocatalysis Using Tungsten Trioxide (酸化タングステン光触媒を用いた水浄化に関する研究)
主査	筑波大学教授 博士(農学) 張 振 亜
副査	筑波大学教授 農学博士 杉 浦 則 夫
副査	筑波大学教授 学術博士 水 鉦 揚 四 郎
副査	筑波大学准教授 博士(生物工学) 楊 英 男

論 文 の 内 容 の 要 旨

水環境が悪化していく中で、効果的、経済的かつ環境にやさしい水処理の技術が望まれている。一方、光触媒による酸化力は極めて強力で、有機物を完全に無機化できることから、有害化学物質分解などの環境浄化に注目されるようになった。酸化タングステンは低コストでかつ可視光に対応するバンドギャップ(2.4-2.8 eV)を有するため、可視光応答型光触媒として大いに期待されている。本研究では Pd 或いは Pt 助触媒を担持したタングステン触媒を合成し、有機汚染物の分解及び抗菌性能について評価を行い、合成した触媒を用いて新規水質浄化システムの開発を目的とした。本論文では、パラジウム助触媒を担持したタングステン触媒は機械的な混合方法で作成された。人工太陽光の下で、マラカイトグリーン (MG) と 2-methylisoborneol (MIB) の酸化分解反応によって粉末光触媒活性を評価した。次に、Pd 含有量と触媒使用量が MG と MIB の酸化分解に対する効果を考察した。また、本論文では、Pt 助触媒を担持したタングステン (Pt/WO₃) の抗菌作用について研究した。国立環境研究所から入手した *Chlorella vulgaris* (NIES-227) を供試菌とした。生存率からサンプルの抗菌効果を判断した。生存率の確認は、Chlorophyll 自発蛍光法で行った。

本論文では、人工太陽光の下で、パラジウム助触媒を担持したタングステンをを用いて、マラカイトグリーン (MG) と 2-methylisoborneol (MIB) の酸化分解を調べ、Pd 含有量は 0.5 wt%、光触媒の含有量は 150 mg L⁻¹ で最適であるということを明らかにした。また、MG と MIB の酸化分解は一次元の動力学方程式のモデルに適合している。MG が WO₃ によって吸収されない可視光 ($\lambda > 470$ nm) の下でも分解されるため、分解のメカニズムは酸化分解と self-sensitized 分解に関与すると考える。本研究の結果、最適分解条件では MIB (0.6 μ g/l) が 30 分以内に完全に分解されることが確認された。よって、Pd/WO₃ の酸化分解技術が水の脱色などに役立つものであることが示唆された。

また、本研究では、比較的簡便でかつ迅速に光触媒の抗菌効果の評価手法を確立した。この手法は chlorophyll 自発蛍光法を用い、生きている細胞がもつ完全な chlorophyll 分子は赤い蛍光を発するが、死滅した細胞が持つ chlorophyll 分子は赤い蛍光を発しない現象を利用して、生菌数で生存率を確認するという方法

で光触媒の抗菌性能を判定する有効な方法であると考えられる。本論文では、このような方法を用いて、Pt 助触媒を担持したタングステン (Pt/WO₃) の抗菌作用について検討したところ、殺菌性能は界面活性剤 Tween 80 を加えることによって大きく改良されることが明らかになった。Tween 80 は光触媒粒子の *C. vulgaris* への吸着性能を増強させることができる。この結果は、光触媒と微生物細胞の相互作用が殺菌性能にとって非常に重要であることを示した。また、人工太陽光の下で、Pt/WO₃ を用いた *C. vulgaris* 細胞の死滅曲線は誘導ステップとそれに後続する加速ステップの2つのステップから成っている。それは太陽光の強度や細胞の濃度、光触媒の濃度も光触媒の殺菌性能に影響を与えることが立証されている。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は Pd 或いは Pt 助触媒を担持したタングステン触媒を合成し、有機汚染物の分解及び抗菌性能について評価を行い、合成した触媒を用いて新規水質浄化システムの確立を行ったものである。本研究は最適分解条件では MIB (0.6 µg/l) が 30 分以内に完全に分解されることが確認され、Pd/WO₃ の酸化分解技術が水の脱色などに役立つものであることが示唆された。また、比較的簡便でかつ迅速に光触媒の抗菌効果の評価手法が確立された。この手法は chlorophyll 自発蛍光法を用い、生きている細胞がもつ完全な chlorophyll 分子は赤い蛍光を発するが、死滅した細胞が持つ chlorophyll 分子は赤い蛍光を発しない現象を利用して、生菌数で生存率を確認するという方法で光触媒の抗菌性能を判定する有効な方法であると評価できる。殺菌性能は界面活性剤 Tween 80 を加えることによって大きく改良されることが明らかになった。光触媒と微生物細胞の相互作用が殺菌性能にとって非常に重要であることが示された。さらに、太陽光の強度や細胞の濃度、光触媒の濃度も光触媒の殺菌性能に影響を与えることが立証された。本研究では貴重な実験データが得られ、合成した触媒の水環境浄化への応用に科学的かつ技術的助言が提供できた点をオリジナリティに富む研究として高く評価できる。

よって、著者は博士（環境学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。