# 4P054

# $172 \text{ nm } X e_2$ エキシマーランプによる $SO_2$ の分解過程に関する研究

(九州大院・総理工<sup>1</sup>, 九大先導研<sup>2</sup>, ウシオ電機<sup>3</sup>) 川原 孝史<sup>1</sup>, 川原 将司<sup>1</sup>, 加茂 直大<sup>1</sup>, 辻 正治<sup>1,2</sup>, 菱沼 宜是<sup>3</sup>

#### 1. 緒言

SO<sub>2</sub> は石炭や石油の燃焼時に排出され、排出源として発電所や工場や自動車などがあげられる。 SO<sub>2</sub> は水の存在下で硫酸となり酸性雨の原因になったり、呼吸器系疾患の原因になったりする。 排ガスの除去に関しては設備コストや運転コストが安価でコンパクトかつ高効率な脱硫装置が求められている。

最近我々は、運転コストが安くコンパクトであり、高価な触媒や吸収材などを一切必要としない  $172 \text{ nm } Xe_2$  エキシマーランプを用いた排ガス処理装置の開発研究を行っている。172 nm 光は  $N_2$  には全く吸収されないため  $O_2$  存在下でも  $N_2/O_2$  の光反応による NOx 生成という問題は起こらないという利点がある。本研究では 172 nm 真空紫外  $Xe_2$  エキシマーランプによる  $SO_2$  の分解過程に関する研究を閉鎖系とフロー系を用いて行った。さらに仮想排ガス雰囲気(窒素 90% + 酸素 10%)で  $SO_2$  と  $NO_2$  の同時分解実験もフロー系で行った。

#### 2. 実験

実験装置を図 1 に示す。 $SO_2+N_2$  または  $SO_2+N_2+O_2$  混合物をチャンバー内に導入し 閉鎖系とフロー系で分解実験を行った。ここで  $N_2:O_2$  比は四重極質量分析計(QMS)で決定した。混合ガスに  $172\,$  nm 光を照射する前と一定時間照射後の  $SO_2$  と生成物の濃度を測定し、 $SO_2$  の残留率と各生成物の生成率を決定した。 $Xe_2$  ランプには市販の  $50\,$  mW/cm³ のものとウシオ電機の試作装置である  $300\,$  mW/cm³ のものを用いた。今回フロー系ではすべて  $300\,$  mW/cm³ のランプを用いた。

#### 3. 実験結果

### 3.1 閉鎖系

閉鎖系において窒素 100%と窒素 80% +酸素 20% のときの  $SO_2$  残留率の照射時間依存性を図 2 に示す。このときの  $SO_2$  濃度は 1000 ppm である。 窒素雰囲気中では次の反応が起きる。

$$SO_2 + h$$
 (172 nm)  $S + O_2$  (1)

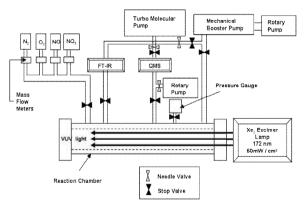


図 1. 実験装置図

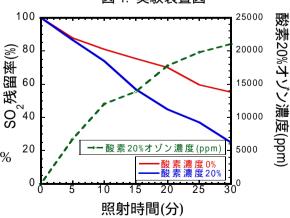


図2.閉鎖系におけるSO<sub>2</sub>(1000 ppm) の処理効率(50 mW/cm³)

よってチャンパー内にSの付着が確認された。

一方酸素雰囲気中においては以下の反応が起きる。

$$O_2 + h$$
 (172 nm)  $O(^1D) + O(^3P)$  (2)

$$O(^{3}P) + O_{2} + M($$
第三体 $) O_{3} + M$  (3)

これらの反応で生成する O(¹D)や O<sub>3</sub>やと SO<sub>2</sub> との 反応で SO<sub>3</sub> や H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> が生成すると考えられる。

$$O + SO_2 + SO_3 \tag{4}$$

$$O_3 + SO_2 + SO_3 + O_2$$
 (5)

$$SO_3 + H_2O(impurity)$$
  $H_2SO_4$  (6)

図 2 より窒素中における 172 nm 光照射での直接的な光分解よりも、酸素中での  $O_3$  や  $O(^1D)$ による分解のほうが効率的に  $SO_2$  を変換可能なことが分かる。

# 3.2 フロー系

図 3 に流量 1 L/min において酸素濃度を変化させた時の  $SO_2$  濃度 200 ppm の残留率(%)を示す。酸素濃度を 10,20% と増加させるにつれて  $SO_2$  の残留率は減少し、酸素を 20%導入した場合では約50%に減少させることができた。

# 3.3 SO<sub>2</sub>+NO<sub>2</sub> 処理

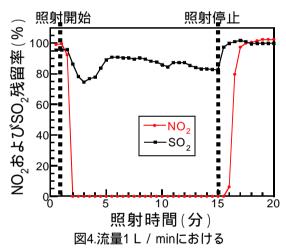
図 4 に流量 1 L/min において仮想排ガス雰囲気下(窒素 90%+酸素 10%)で  $SO_2$  200 ppm と  $NO_2$  200 ppm の混合気体を処理したときの実験結果を示す。ここで  $NO_2$  が  $N_2O_5$  や  $HNO_3$  へ変換される過程を以下に示す。

$$NO_2 + O_3 \qquad NO_3 + O_2$$
 (7)

$$NO_2 + NO_3 + N_2$$
  $N_2O_5 + N_2$  (8)

$$N_2O_5 + H_2O(impurity)$$
 2HNO<sub>3</sub> (9)

図3.流量1 L / minにおけるSO<sub>2</sub>(200 ppm) の処理効率



NO<sub>2</sub>(200 ppm) + SO<sub>2</sub>(200 ppm)の処理効率 (窒素90 % + 酸素10 雰囲気)

 $NO_2$  は完全に 172~nm 光照射後は 100% フロー系において分解されることが分かる。また  $SO_2$  に関しては  $SO_2$  単独での実験の結果よりも若干残留率が高くなったものの  $NO_2$  共存下でも真空紫外光による処理が可能であることがわかった。

## 4. まとめ

流量 1 L/min において  $SO_2$  は  $SO_3$  や  $H_2SO_4$  に変換でき、 $NO_2$  は  $N_2O_5$  や  $HNO_3$  に変換できた。ここで  $SO_2$  や  $NO_2$  は水に溶けず非常に回収しにくいが、照射後は液体や水に溶けやすいものになり回収が容易になる。また  $SO_2$  と  $NO_2$  の混合ガスの同時軽減も可能であることが分かった。よって今回試みた真空紫外光プロセスは触媒を用いずコンパクトでかつ低ランニングコストの大気汚染物質の同時処理法としての実用化が期待できる。