3P074 ArF エキシマレーザーによる NOx の分解機構

(九大院総理工 1 ・九大先導研 2 ・CREST 3)

野田 健二¹, 迫 寛之¹, 濱上 太郎², 辻 剛志¹⁻³, 辻 正治¹⁻³

ArFエキシマレーザーを用いて、N₂OおよびNO₂の選択的光分解を試みた。N₂Oを 193 nm 光で光分解すると、10 分で約 90% $ON_2ONN_2 \ge O_2$ に分解され、かつ有害なNOの発生量は 5% 以下に抑制できることが判明した。またNO₂に 193 nm光を照射することでNO₂もNO $\ge O_2$ に 分解することを確認した。

【緒言】

自動車や発電所の排ガス中に含まれるN₂O, NO₂は、温室効果やオゾン層の破壊の両方に 大きな影響を及ぼす。高価な触媒を使用しなNN₂O処理技術として放電プラズマの利用が注 目されているが、放電プラズマの最大の課題は、プラズマ中に少量でもN₂とO₂が共存する と気相放電反応でNOが発生し、NOxの除去が困難なことである。¹⁾そこで我々はN₂, O₂共 存下でもN₂Oの除去が可能な光分解プロセスの開発研究を行っている。193 nmではN₂Oの光 吸収係数がN₂とO₂と比較して著しく大きいことに着目し、193 nm ArFエキシマレーザーを 用いた大気圧空気中でのN₂Oの選択的分解プロセスの開発研究を行った。同様の分解処理プ ロセスの開発研究をNO₂についても行った。

【実験】

実験装置図をFig.1 に示す。 N₂O/N₂,N₂O/N₂/O₂ 又 は NO₂/N₂, NO₂/N₂/O₂の混合物を一定量反応セ ル内に導入し、系内を大気圧に保っ た後、ArFエキシマレーザー(波長: 193 nm, エネルギー: 40 ~ 120 mJ/pulse、繰り返し周波数:5 Hz、照 射時間 1~30 分)を照射した。レー ザー照射後、四重極質量分析計 (QMS)によってチャンバー内のガ スを検出し、N₂O, NO₂の分解率とN₂,





O₂, NOの生成率を決定した。また分解機構を考察するために実験結果を光吸収係数と反応 速度定数を用いたモデル計算結果と比較した。

【結果と考察】

N₂O/N₂/O₂混合ガスに 193 nm光を照射したときの照射時間依存性をFig. 2 に示す。大気圧 空気中でN₂Oに 193 nm光を 10 分間照射すると、N₂Oが約 90%分解され主にN₂とO₂を生成し



た。一方NOの生成率は、O2の存在下 で 5%以下に抑制できることがわか った。よって本手法はO2存在下でも 高価な触媒を使用することなくN2O を高分解処理可能なことが判明した。 Fig. 2 の波線は以下の反応を主とし た24個の気相素反応過程を仮定して 求めたモデル計算結果である。モデ ル計算結果は実測結果をほぼ再現し、 分解モデルの妥当性を示した。

 $N_{2} + O(^{1}D)$ $N_2O + h$ (1) $O(^{1}D) + N_{2}O$ $N_2 + O_2$ (2a) 2NO (2b) $O(^{3}P) + M$ $O(^{1}D) + M$ (3) $2O(^{3}P) + M$ $O_2 + M$ (4) $O(^{1}D) + NO$ $O(^{3}P) + NO$ (5a) $O_2 + N(^4S)$ (5b) $N_2 + O(^{3}P)$ $N(^{4}S) + NO$ (6) $M = N_2, O_2$

Fig.3(a),(b)にN₂/NO₂混合ガスに 193 nmレーザーを照射前と 30 分照射後 のマススペクトルを示す。NO₂⁺(m/z = 46)の強度は 40%減少し、生成物であ るO₂⁺(m/z = 32)の強度は増加した。こ れは以下の反応によりNO₂がNO, O₂ に分解されたことを示唆している。 結果の詳細および実験結果とモデル

$$NO_{2} + h \quad (193 \text{ nm})$$

$$NO + \quad O(^{1}D) + \quad O(^{3}P) \quad (7)$$

$$O(^{3}P) + NO_{2} \qquad NO + O_{2} \qquad (8)$$

$$O(^{1}D) + NO_{2} \qquad NO + O_{2} \qquad (9)$$

計算結果との比較は当日の発表で紹介する予定である。

【参考文献】

1) M. Tsuji, J. Kumagae, K. Nakano, T. Matsuzaki, T. Tsuji, *Appl. Surf. Sci.*, 217, 134 (2003).