

【緒言】

化石燃料の燃焼ガス中や車の排ガスに含まれる亜酸化窒素(N_2O)は、温暖化やオゾン層の破壊等、地球環境問題に大きく関わり、その挙動が注目されている。現在、大気環境浄化のための NO_x 処理プロセスとして三元触媒等の還元法があげられるが、 N_2O は O_2 や SO_x の存在下で触媒が被毒を受け、処理が困難となる。以前に我々は放電プラズマによる N_2O の分解処理過程を研究し、放電プラズマを使用すれば窒素中では高効率で N_2O を分解処理可能なことを見出した。¹⁾しかし、少量の酸素を添加すると分解率は著しく低下し、また $N_2O/O_2/N_2$ の気相放電反応で NO が発生し、 O_2 存在下では NO_x 除去が困難なことがわかった。その後我々は波長193 nmにおいて N_2O の光吸収係数が O_2 と比べて300倍大きいことに着目し、ArFエキシマーレーザーを用いた大気圧窒素・空気中での N_2O の選択的な光分解処理プロセスの開発研究を行っている。今回は従来より低 N_2O 濃度(100 ppm)での測定もFTIRを用いて行った。得られた実験結果とモデル計算値とを比較することによって、その分解機構を考察した。^{2,3)}

【実験】

図1に実験装置図を示す。
 N_2O/N_2 又は $N_2O/N_2/O_2$ 混合ガスを反応セル内に導入し、系内を大気圧に保った後、ArFエキシマーレーザー(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。照射後の N_2O の分解率、 N_2 、 O_2 、 NO の生成率はガス分析用質量分析計(QMS)、フーリエ変換赤外吸収スペクトル(FT-IR)分析法を用いて決定した。

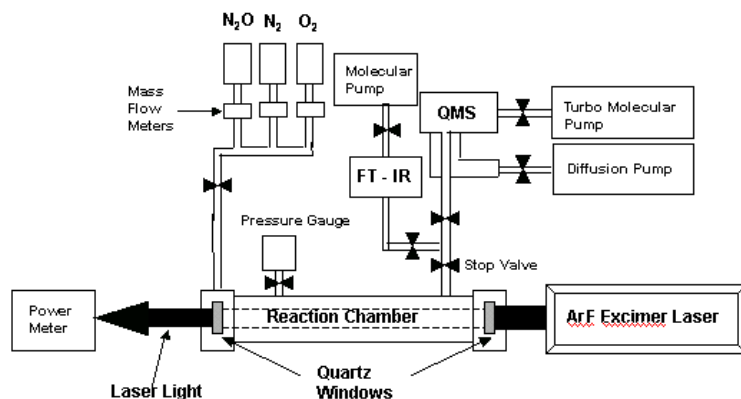


図1. 実験装置図

【結果と考察】

図2, 3に、大気圧空気中で N_2O を5%(50000 ppm)含む系と0.01%(100 ppm)含む系に193 nm光を照射したときの N_2O の残留率、 N_2 、 O_2 、 NO の生成率の照射時間依存性をそれぞれ示す。図2より N_2O を5%(50000 ppm)含む系では、15分で約90%の N_2O が主に N_2 と O_2 に分解し、有害な NO の発生量を10%以下に抑制できることがわかった。また、図3より N_2O を0.01%(100 ppm)含む系では、 N_2O が10分で、ほぼ完全に無害な N_2 と O_2 に分解し、 NO は全く生成しないことがわかった。

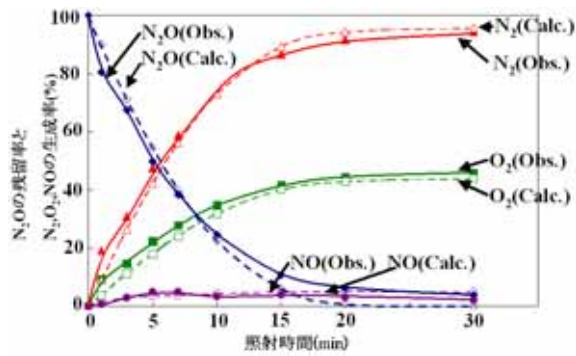


図 2. N₂O を 5% 含む系におけるレーザー照射時間に対する N₂O の残留率、N₂, O₂, NO 生成率の実験結果と計算結果 (実線は実験値を波線は計算値を示す)

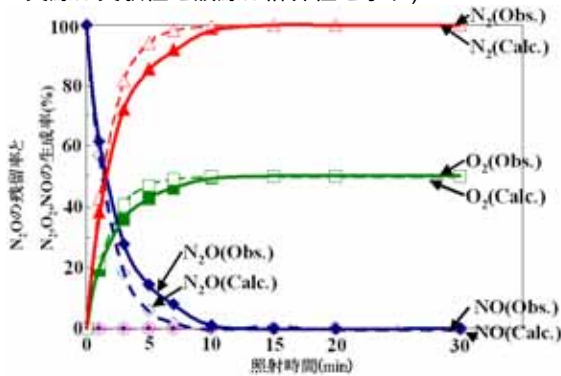


図 3. N₂O を 100 ppm 含む系におけるレーザー照射時間に対する N₂O の残留率、N₂, O₂, NO 生成率の実験結果と計算結果

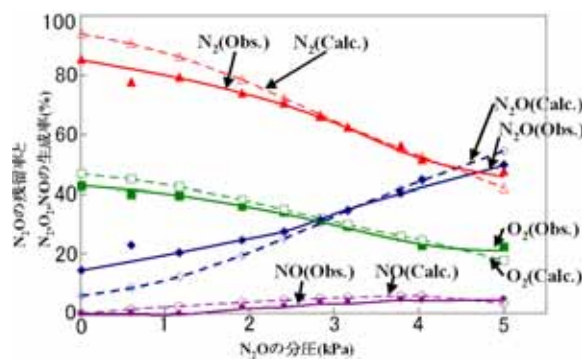
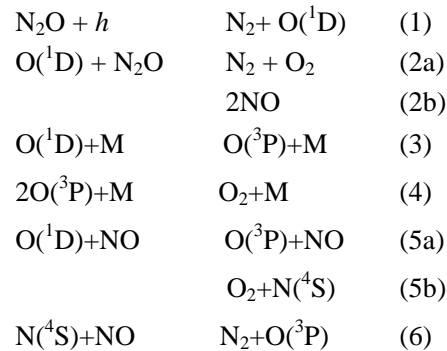


図 4. N₂O を 193 nm 光を 5 分照射したときの N₂O 分圧に対する N₂O 残留率、N₂, O₂, NO 生成率の実験結果と計算結果

図 4 に、大気圧空气中で N₂O の濃度を 0.01 % (0.01 kPa) から 5 % (5.06 kPa) まで変化させ、193 nm 光を 5 分間照射したときの N₂O 残留率、N₂, O₂, NO の生成率の N₂O 分圧依存性をそれぞれ示す。N₂O 濃度が薄いと、N₂O の残留率は低くなり、NO の生成率はより低くなることが確認された。

図 2-4 の波線は以下の N₂O 光分解(1)と O(¹D)との反応(2)で N₂O が分解する過程を中心に、全部で 27 個の気相素反応を考慮した計算結果である。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が示唆された。



$$M = \text{N}_2, \text{O}_2$$

本研究では大気圧窒素・空气中で ArF エキシマーレーザーを用いた、選択的な N₂O の光分解処理プロセスの開発を行い、N₂O を酸素存在下の空气中でも無害な N₂ と O₂ に高效率で、高分解処理が可能なが示唆された。さらに N₂O 光分解過程での有害な NO の生成を抑制できた。

また 193 nm 光を用いた本手法は、高価な触媒を使用することなく、実際の化石燃料の燃料ガスや自動車の排ガス中に含まれる ppm レベルの低濃度 N₂O の光分解処理に対してより有効なことが確認された。

[参考文献]

- 1) M. Tsuji, J. Kumagae, K. Nakano, T. Matsuzaki, and T. Tsuji, *Appl. Surf. Sci.*, **217**, 134 (2003)
- 2) M. Tsuji, J. Kumagae, T. Tsuji, and T. Hamagami, *J. Hazard. Mater.*, **108**, 189 (2004)
- 3) M. Tsuji, H. Sako, K. Noda, M. Senda, T. Hamagami, and T. Tsuji, *Chem. Lett.*, **34**, 812 (2005).