

真空紫外光を用いたN₂O分解プロセスの開発(九大院総理工¹, 九大先導研²) 仙田 慎¹, 川原 将史¹, 辻 正治²

【緒言】

N₂Oは、対流圏に約 310 ppb程度と微量成分ながら、114 年という長い寿命を持つために、温暖化やオゾン層の破壊に大きく寄与することが知られている。近年、病院や自動車、化学工場などの発生源によって、N₂O濃度が増加している。現在NO_x処理プロセスとして選択的触媒還元法(SCR法)が上げられるが、O₂やSO_xの存在下では触媒が被毒してしまう問題がある。そこで、我々は波長 193 nmにおいてN₂Oの光吸収係数がO₂と比べて約 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N₂Oの選択的な光分解処理プロセスの開発研究を行ってきた。その結果、有害なNOの生成を抑制し、N₂Oを大気圧空気中でも無害なN₂とO₂に高効率で、高分解処理が可能であることを明らかにしてきた。^{1,2)} 本研究ではさらに光処理プロセスの実用化を目指して、レーザーと比べて小型で廉価な光源であるXe₂エキシマーランプ(波長: 172 nm)を用いたN₂Oの光分解プロセスの開発について検討を行った。今回は大気圧・窒素中でのN₂Oの分解処理について考察した。

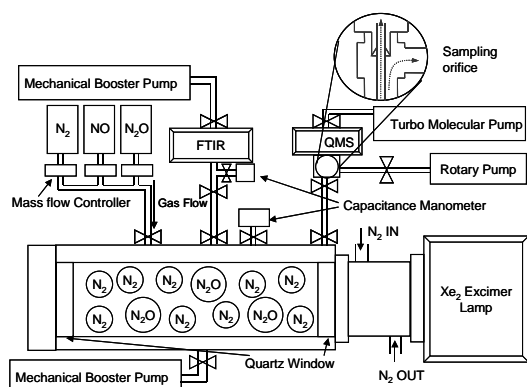
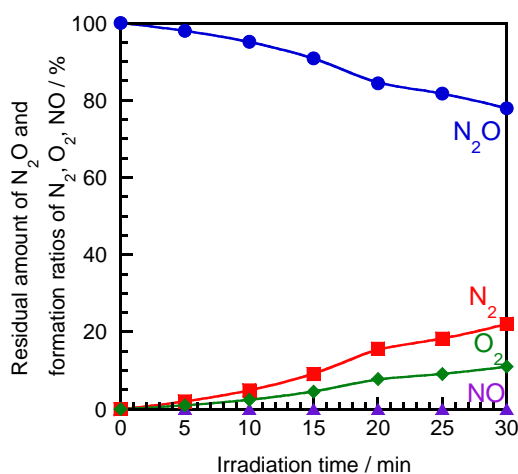


図 1. 実験装置図

図 2. N₂O(100 ppm)172 nm光分解の照射時間依存性

【実験】

図 1 に実験装置図を示す。N₂O/N₂又はNO/N₂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、Xe₂エキシマーランプ(波長: 172 nm、エネルギー: 50 mJ/cm²、照射時間: 1~30 分)を照射した。混合ガス中の照射後のN₂O(NO)の残留率、N₂、O₂、NO(N₂O)、NO₂の生成率は、それぞれ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。N₂O(NO)の残留率(%)は[N₂O]/[N₂O]₀([NO]/[NO]₀)比、各成分の生成率は[生成物]/[N₂O]₀([生成物]/[NO]₀)比からそれぞれ求めた。ここで[N₂O]₀、[NO]₀はそれぞれN₂O、NOの初濃度を示す。

【結果と考察】

図 2 に大気圧窒素中でN₂Oを 100 ppm含む系(N₂O/N₂)における光分解の照射時間依存性を示す。図 2 から照射 30 分でNO、NO₂の生成なしで、N₂Oを約 20 %分解処理できることがわかった。N₂O光分解は次式で反応が進む

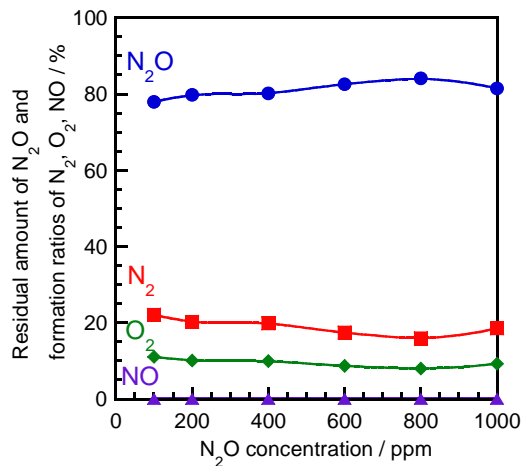


図 3. N₂O 172 nm 光分解の N₂O 濃度依存性

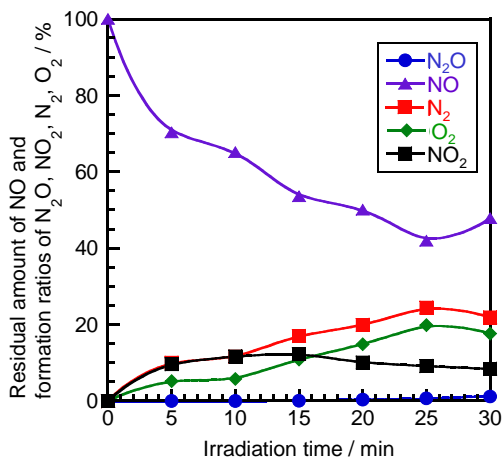
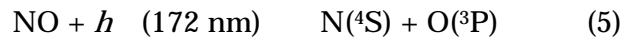


図 4. NO (100 ppm) 172 nm 光分解の照射時間依存性

NO を 100 ppm 含む系 (NO/N₂) における光分解の結果を示す。図 4 から光照射 30 分で NO を約 50 % 分解処理できることがわかった。また光照射 30 分で NO₂ の生成率を約 10 %、N₂O の生成率を約 1 % に抑制することができた。172 nm 光 (7.21 eV) では NO の解離エネルギー (6.496 eV) を超えるため (5) 式のような NO の光分解が可能となったものと考えられる。



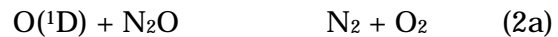
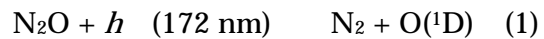
また NO 光分解についても NO 濃度依存性 (NO 濃度 : 0 - 1000 ppm、光照射時間 30 分) を調べたところ、N₂O 光分解 (図 3) と同様に NO 残留率に変化が見られないことがわかった。

本研究では現在の NO_x 処理の主流である触媒プロセスに代わる新しい除去法として、172 nm Xe₂ エキシマーランプを用いた N₂O 分解プロセスの開発研究を行った。その結果、大気圧・窒素中において光照射 30 分で N₂O を約 20 %、NO を約 50 % 分解処理可能なことがわかった。

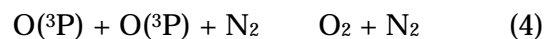
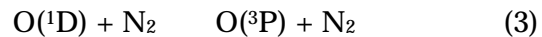
【参考文献】

- 1) M. Tsuji, H. Sako, K. Noda, M. Senda, et al., *Chem. Lett.*, **34**, 812 (2005).
- 2) M. Tsuji, M. Senda, M. Kawahara, et al., *New Research on Hazardous Materials*, Nova Science Publishers, Inc. in press.

と考えられる。



しかし NO は生成しないことから、(2a, 2b) の反応は進まず、O (¹D) は (3, 4) 式に示すような雰囲気ガスである N₂ と衝突・失活し、O (³P) を経て、O₂ に変化することが示唆される。



次に大気圧窒素中で N₂O 濃度を変化させ、光照射時間を 30 分に固定したときの N₂O 光分解の結果を図 3 に示す。図 3 より N₂O 濃度を 0 - 1000 ppm まで変化させても N₂O 残留率、N₂、O₂、NO 生成率にほとんど変化がなかった。これよりこの濃度範囲では N₂O 光分解は N₂O 濃度に依存しないことが判明し、本手法は現時点において N₂O 分解率は低いものの、高濃度の N₂O 分解処理に対して有効であることが示唆された。また O₂ を約 20 % 導入すると N₂O 分解率が約 34 % に向上する結果も得られた。

一般に N₂O 光分解過程では (2b) 式のような有害な NO 生成反応も考えられるため、NO の光分解についても検討した。図 4 に大気圧窒素中で