

マイクロ波放電を利用したN₂Oの三酸素同位体分析

Triple oxygen isotope analysis of N₂O using microwave-discharge method

向高 新^{1*}, 豊田 栄¹, 吉田 尚弘¹

Arata Mukotaka^{1*}, Sakae Toyoda¹, Naohiro Yoshida¹

¹東工大・総理工・化学環境学

¹Environ. Chem. & Engin., Titech.

近年、質量依存分別の関係、すなわち $d^{17}\text{O} = 0.5d^{18}\text{O}$ の式に従わない酸素同位体組成をもつN₂Oが対流圏および成層圏で発見された[Cliff et al., 1997,1999; Kaiser et al., 2003; Rockmann et al., 2001]。これまでのN₂O酸素同位体比測定法では、金触媒を利用した熱分解法によって得られるO₂の質量分析が行われている[Cliff et al., 1994; Kaiser et al., 2007; Komatsu et al., 2008]。しかし20 nmol以上のN₂Oを必要とし[Komatsu et al., 2008]、限られた量(1 L以下)の対流圏・成層圏大気試料に適用するのは困難であった。本研究ではN₂O分解にマイクロ波放電を利用してN₂Oの酸素同位体比測定法の微量試料への適用を試みる。

まずマイクロ波放電を用いたN₂Oの分解実験を閉鎖系で行った。各分解実験で用いたN₂Oの量は200 nmol以下である。実験は放電部分の圧力、マイクロ波の出力および放電時間を調節して行った。得られた生成物N₂、O₂およびNO_x(NOとNO₂)をGC-TCDを用いて定量し、N₂とO₂の収率およびN₂/O₂比を求めた。次にヘリウムフロー中で20 nmolのN₂Oを分解し、生成したO₂をGCで精製した後、オンラインで安定同位体比質量分析計に導入して同位体比を測定するとともに質量数32のイオンのピーク面積から回収率を求めた。

閉鎖系でのN₂O分解実験では、O₂は最大90%の収率が得られ、N₂/O₂比は化学量論に近い値をとった場合があったが、一方でNO_x生成によってO₂が得られなかった場合もあり、実験の結果と条件の関連性を見つけるに至らなかった。ヘリウムフロー中での分解実験では、N₂Oの分解が可能であることは確認できた。現在はN₂O分解で得られるO₂の回収率を上げるための最適条件の検討および同位体比の測定に取り組んでいる。

キーワード: N₂O, 同位体, 酸素同位体比, マイクロ波放電

Keywords: N₂O, isotope, oxygen isotope composition, microwave discharge