

窒素／水素混合低ガス圧小型 ECR プラズマにおける 窒素原子密度とアンモニア生成レートの関係

Relationship between nitrogen atom density and ammonia production rate
in N_2/H_2 low-pressure miniature ECR plasma

北大工¹ [○](M1)植林彰吾¹, 佐々木 浩一

School of Engineering, Hokkaido Univ.¹, [○]Shogo Uebayashi¹ and Koichi Sasaki¹

E-mail: buckman-7510@eis.hokudai.ac.jp

【本研究の背景および目的】

プラズマと触媒を併用したアンモニアの合成プロセスにおいて、アンモニアの生成には窒素原子が寄与すると考えている研究が多いが、振動励起状態窒素分子の寄与を指摘する研究もある。本研究では、窒素／水素混合低ガス圧プラズマにおいて、アンモニアの生成レートと窒素原子密度を測定し、それらの相関関係を調べることを目的とした。前回報告したように、実験に用いた小型 ECR プラズマ源では真空容器壁面の状態に起因するとみられる窒素原子密度のヒステリシス現象が観察され、放電条件に対する窒素原子密度の再現性が低い。そのため、今回は窒素原子密度とアンモニアの生成レートを同時に測定して相関関係を調べた。

【実験方法】

永久磁石を用いた小型 ECR プラズマ源を別の ECR 窒素プラズマ（真空紫外光源）および真空紫外分光器の間に設置し、光源として用いた ECR プラズマで発生する窒素原子の共鳴発光 ($^4S^o-^4P$ 遷移、波長 120 nm) の小型 ECR プラズマ中の窒素原子による吸収から、基底状態 ($^4S^o$) 窒素原子の絶対密度を求めた。小型 ECR プラズマの窒素および水素の流量をそれぞれ 0.5sccm および 1.5sccm とし、全圧が 0.5Pa～1.0Pa の条件で実験を行った。マイクロ波電力は 40W～80W の範囲で変化させた。まず、水素／窒素混合プラズマを点灯した状態で窒素原子密度を真空紫外吸収分光法を用いて測定し、そのままの状態、オリフィスを介して差動排気された別の真空容器に設置した四重極質量分析器を用いてアンモニアを検出した。この時、独自の方法を用いて、アンモニアの生成レートとプラズマ中での損失周波数を別々に求めた。なお、本実験では、アンモニア合成に適するとされるルテニウムなどの触媒を用いておらず、ステンレス製真空容器の壁面が触媒の代用として作用する環境で実験を行った。

【実験結果および考察】

同時測定により得られた窒素／水素混合プラズマ中の窒素原子密度とアンモニアの生成レートとの関係を図 1 に示す。この結果は、アンモニア生成レートが窒素原子密度に依存しないことを示している。そのメカニズムは現時点では不明であるが、真空容器表面の被覆率が高く窒素原子の吸着が生成レートを律速している可能性、および、真空容器表面に吸着した窒素を水素化するステップが生成レートを律速している可能性が考えられる。また、今回は、真空搬送 XPS 装置を用いた表面被覆率の測定実験との整合性から低ガス流量で実験を行ったが、窒素分子からアンモニアへの転換率は 50%を超えており、アンモニアの生成レートが原料供給によって律速されている可能性もある。これらの可能性について、講演までには検証して報告したい。

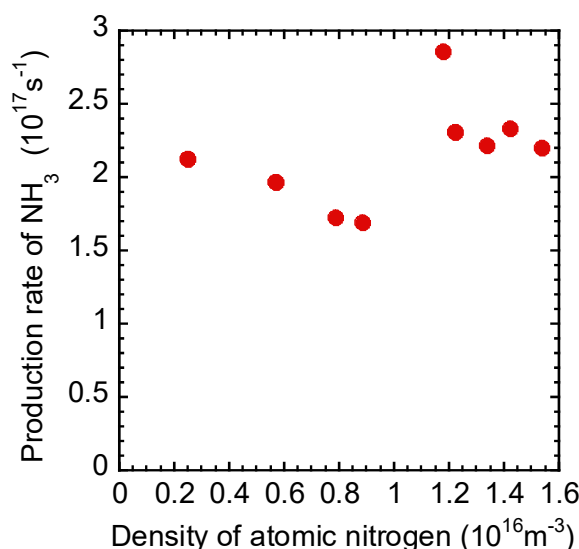


図 1 低ガス圧窒素／水素混合プラズマにおけるアンモニアの生成レートと窒素原子密度の関係