

酸化マグネシウムのプラズマ還元における水素ガス流量の影響 Effect of Hydrogen Gas Flow Rate in Hydrogen Plasma Treatment of MgO

岸 真夏, 荻野 明久
KISHI Manatsu, OGINO Akihisa

静岡大学大学院総合科学技術研究科
Graduate School of Integrated Science and Technology, Shizuoka University

【背景と目的】 NaBH₄は水と反応し多量の水素を生成でき、粉体水素キャリアとして優れた特性を有する。この水素発生反応後の副生物であるNaBO₂をNaBH₄に再生する循環利用プロセスを実現するため、還元剤としてのMgH₂の役割に注目している。このプロセスの実用化において、MgH₂の原料コスト低減が重要となるが、一般的なMgH₂生成は高温高压を必要とし、その生成速度も低いことが課題である。非平衡プラズマによる水素化では、水素ラジカルおよびイオンによる還元反応が自発的に進行し、高い還元効果と生成コストの低減を期待できる。本研究では、MgH₂生成に必要な原料コストの低減を目的として、プラズマプロセスによるMgOの水素化を検討するとともに、プラズマ生成用水素ガスの消費量を低減したときの影響を評価した。

【実験方法】 水素ガス圧15 Pa、水素ガス流量 $Q=100$ または5 sccmとして、マイクロ波励起プラズマを生成し、MgOを水素化した。プラズマ処理では、マイクロ波ランチャーから試料までの距離 z を変え、試料へのイオンフラックス Γ_i を制御した。プラズマ処理後のMgOは、ラマン分光法等で解析するとともに、プラズマパラメータ、試料温度 T の測定結果と比較することで、水素ガス流量の影響を検討した。

【結果と考察】 図1は水素プラズマ処理時の Γ_i に対する T の測定結果を示す。水素ガス流量 $Q=100$ または5 sccmとしてプラズマを生成し、プラズマ照射10分後の T を比較したところ、ガス流量を低減したときの Γ_i に対して T が高くなった。この要因として、ガス流量低減により、試料からガスへ熱伝導損失が減少、およびMgOの水素化時の化学反応熱の増加が考えられる。

図2は $Q=100$ または5 sccmとし、 Γ_i を変えて10分間水素プラズマ処理したMgOのラマンスペクトルを示す。 $Q=100$ sccmのとき、 Γ_i の増加とともに水素化が進み、ラマンスペクトルがMg(OH)_x:275 cm⁻¹からMgH₂、Mg(OH)₂:257 cm⁻¹へ変化し、その過程でMgH_xのスペクトルが観ら

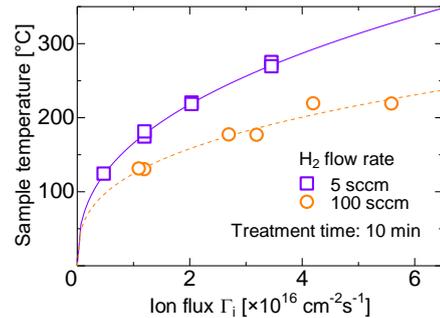
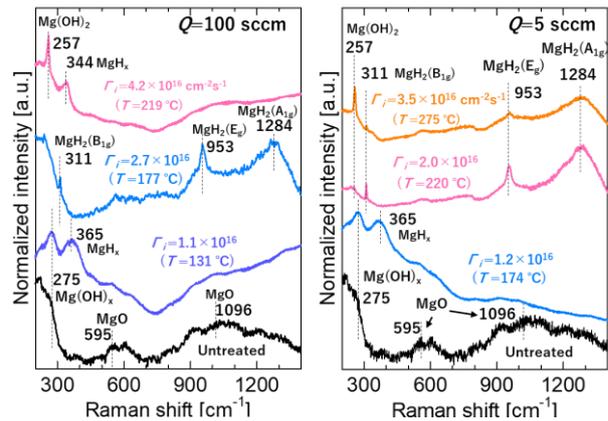


Fig.1 Dependence of sample temperature T of MgO on ion flux Γ_i



(a) $Q=100$ sccm (b) $Q=5$ sccm
Fig.2 Raman spectra of MgO after H₂ plasma treatment.

れた。 $\Gamma_i=1.1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ で現れるMgH_x:365 cm⁻¹はMgH₂の中間体であると推測した。また、MgH_x:344 cm⁻¹はMgH₂の点欠陥である可能性が示唆されており、過剰なイオン照射によるエッチングおよび試料温度上昇による水素の熱脱離により生じたものと思われる。流量を減じ $Q=5$ sccmとすると、100 sccm時と同様に Γ_i の増加とともに水素化が進行し、Mg(OH)_xからMgH₂に変化した。さらに、高イオンフラックスの $\Gamma_i=3.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ においてMgH₂の主要な3つのピークが消失せず、維持されていた。ガス流量低減時には、プラズマ還元により揮発したH₂Oが排気されず反応場に滞在し、高 Γ_i ・高温の試料表面での反応に影響している可能性がある。