

# カーボンリサイクリングのための太陽電池製造とエネルギー貯蔵に対するプラズマ応用に関する基礎研究

都甲, 将

<https://doi.org/10.15017/1931927>

---

出版情報 : 九州大学, 2017, 博士 (工学), 課程博士  
バージョン :  
権利関係 :

氏 名 : 都甲 将

論 文 名 : カーボンリサイクリングのための太陽電池製造と  
エネルギー貯蔵に対するプラズマ応用に関する基礎研究

区 分 : 甲

## 論 文 内 容 の 要 旨

近年、人類のエネルギー使用量はますます増加しており、それと共に主要なエネルギー資源である化石燃料の枯渇が問題視されている。そのため、環境にやさしく、資源枯渇の心配がないクリーンエネルギー、また発電した電力を効率良く運用するシステム開発への期待が高まっている。さらに、根本的にエネルギー問題を解決するために、人類の宇宙への移住という手段も考えられる。JAXA では、火星上に  $\text{CO}_2$  や  $\text{H}_2\text{O}$  といった人類が生きるために必要な物質が豊富に存在することに着目し、地産地消型のエネルギー資源生成を計画している。

本論文においては、太陽電池の中でも安価で薄く、軽い水素化アモルファスシリコン(a-Si:H)太陽電池に関する研究と、電力を使って  $\text{CO}_2$  を  $\text{CH}_4$  に変換する研究を行った。a-Si:H 太陽電池はその特徴から、地球上では IoT 社会に向けてのフレキシブル太陽電池としての役割が期待されており、またその軽さから火星への輸送に適する。また、 $\text{CO}_2$  の  $\text{CH}_4$  化技術は、電力をガスとして貯蔵する Power to Gas (PtG) 技術として注目を浴びている。さらに、 $\text{CH}_4$  は最も扱いやすいロケット燃料でもあるため、人類の宇宙開拓には必須の技術であるといえる。

本論文は、6 章から構成されている。第 1 章では、a-Si:H 太陽電池の問題点である光劣化とその解決策、 $\text{CO}_2$  の  $\text{CH}_4$  化における問題とその解決策をそれぞれ説明した。a-Si:H 太陽電池最大の問題は光の照射によって発電効率が減少する光劣化という現象であり、これはサイズが数 nm 程度の Si ナノ粒子であるクラスターの膜中への混入が原因であると考えられている。本研究では、マルチホロー放電プラズマ CVD 法によってクラスターの混入を抑制した。また、 $\text{CO}_2$  の  $\text{CH}_4$  化における問題は、プロセス条件が高温(200°C 以上)高压(1atm 以上)であるということ、またコーキングによる触媒の劣化により長時間プロセスが不可能であるということである。これらの問題は火星のような低温(-63°C)低压(750 Pa)であり、資材の輸送が容易でない環境では特に顕著に現れる。ここでは、プラズマと触媒を用いることで、低温低压かつ連続プロセスを可能とした。

第 2 章では、実験に用いた装置、マルチホロー放電プラズマ CVD 装置、ヘリコンプラズマ装置、容量結合型プラズマ CVD 装置についてそれぞれ説明した。また、測定に用いた水晶振動子式膜厚計、発光分光法、4 重極質量分析器について説明した。

第 3 章では、マルチホロー放電プラズマ CVD 装置を用いて a-Si:H 膜を製膜し、膜に混入したクラスター量を定量的に測定した結果について報告した。クラスター除去フィルターを用いることで膜中のクラスター混入量を大幅に低減し、良質な a-Si:H 膜を製膜した。さらに、クラスターと製膜速度の関係や、クラスターの成長にヒステリシス性が存在することなど、クラスター混入メカニズムについても明らかにした。

第 4 章では、ヘリコンプラズマ装置を用いて  $\text{CO}_2$  の  $\text{CH}_4$  化を行った結果について述べた。ここで

は触媒を用いておらず、プラズマのみでの変換であるが、常温かつ 15 mTorr という条件において CO<sub>2</sub> 変換率 85%、CH<sub>4</sub> 選択率 35% という他に類を見ない成果を挙げた。ヘリコンプラズマは従来のプラズマより高電子密度であるため、より多く CO<sub>2</sub> の分解を進めることができ、これが高い変換率、選択率につながったと考えられる。

第 5 章では、CCP 装置を用いて、火星大気圧である 750 Pa での CO<sub>2</sub> の CH<sub>4</sub> 化を行った。ここでは平衡平板電極上に触媒を設置して、より高効率にメタン生成を行うと同時にプラズマと触媒の相互作用メカニズムについて考察を行った。結果、CO<sub>2</sub> の分解は CO<sub>2</sub> と電子との衝突によって行われるためその分解速度は非常に速いが、CH<sub>4</sub> の生成は触媒表面で行われるためその生成速度は表面反応速度依存であり、これが生成速度向上のネックとなっていることを明らかにした。ここで、反応の活性化エネルギーを従来(触媒法)の約 1/3 倍である 27.5kJ/mol まで低減することに成功した。今後は表面反応速度をさらに向上するため、触媒上の反応種量を増加させることが重要であるといえる。

第 6 章では、本研究によって得られた結論をまとめ、今後の課題について述べた