

平成21年 4月 30日現在

研究種目：基盤研究（A）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18206078
 研究課題名（和文） 電磁力を利用した太陽電池用モノサイズ球形シリコン粒子の製造法の開発
 研究課題名（英文） Development of fabrication method of mono-sized spherical Si particle for solar cell by using electromagnetic force
 研究代表者
 谷口 尚司(TANIGUCHI SHOJI)
 東北大学・大学院環境科学研究科・教授
 研究者番号：00111253

研究成果の概要：

落下する熔融金属ジェットへの高周波磁場の間欠印加により、粒径の均一な金属球を連続的かつ高速に製造する方法を考案し、熔融 Ga を用いたモデル実験によって、磁場の最適印加条件を検討した。その結果、磁場の間欠印加周波数を液ジェットの優先擾乱周波数と一致させることによって、均一な粒径を有する液滴群が得られることを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	17,200,000	5,160,000	22,360,000
2007年度	8,000,000	2,400,000	10,400,000
2008年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
年度			
年度			
総計	30,500,000	9,150,000	39,650,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：金属生産工学

キーワード：太陽電池、球形シリコン粒子、電磁力、ジェットの分断、熔融ガリウム

1. 研究開始当初の背景

化石エネルギー資源の無制限な収奪によって発展を続けてきた20世紀型文明は、石油を初めとするエネルギー資源の枯渇や、炭酸ガス等の温室効果ガスの蓄積による地球温暖化問題を招来するに至った。快適な生活レベルを維持しながら持続可能な社会を築くためには、化石エネルギーに依存しない新たなエネルギー源を開発しなければならない状況になっている。我が国の直近の課題は、2012年までに1990年における温室効果ガス排出量の6%減を実現しなければならないという京都議定書の履行であるが、2050年には世界全体で50%減を実現するという我が国が掲げた目標の達成も迫られることにな

る。

このような状況下で、新エネルギーに関する研究・開発が急速に推進されているが、その中でも無尽蔵の太陽エネルギーを利用する太陽電池は、早くから我が国が取り組んできた技術分野であり、有望なエネルギー技術の1つである。すでに一般家庭での利用が進んでおり、大規模発電の取り組みも始まっている。初期には太陽電池の総発電量が太陽電池の製造に要するエネルギー量よりも少ないという説が流れたが、最近では稼働2年程度で発電量が製造エネルギー量を超えるまでになっている。しかし、太陽電池の製造コストは未だ高価で、補助金等の優遇措置がなければ導入のインセンティブを付与するこ

とが難しい状況にある。したがって、太陽電池市場を拡大するためには、製造コストを抑制することが、発電効率の向上などの技術課題と並んで重要な課題になっている。

最近、球状 Si を用いた太陽電池セルが開発されている。これは Si インゴットを切断加工する現行法と比較すると、Si 量が 1/5 で済み、太陽光の入射角度依存性が小さいという長所を有している。最近では集光のための椀状の窪みに Si 球を固定するマイクロ集光型球状 Si 太陽電池がクリーンベンチャー21 によって開発され、優れた省資源性と高効率性ととも、可撓性を併せ持つ太陽電池として注目されている。

この太陽電池を普及させるためには、均一サイズの Si 球を高速で製造する技術が不可欠であるが、Si 液滴を滴下する現行法ではこの技術課題を達成することができない。

2. 研究の目的

本研究では、球状 Si 太陽電池の製造に不可欠な、均一サイズの球状 Si を高速で大量生産可能な技術を開発することを目的とした。本研究で採用した方法は、ノズルから落下する溶融 Si ジェットに、高周波磁場を間欠的に印加して、磁場と誘導電流との相互作用によって発生する間欠電磁力を利用して、一定の時間間隔でジェットにくびれを生ぜしめ、下流で液滴に分断する方法である。間欠電磁力の印加周波数は任意に設定可能であり、液ジェットの落下速度も上部液溜の加圧によって制御可能であるために、高速かつ正確に均一サイズの Si 球を製造できることが特徴であり、製造速度に限界(数 100 個/秒)があり、粒径にも分布が避けられない現行法に比して、高い優位性がある。

電磁力を材料プロセスに利用する材料電磁プロセッシング(EPM: Electromagnetic Processing of Materials)技術は、我が国で萌芽した稀有な技術分野であり、研究代表者は我が国の EPM を先導する立場にある。研究代表者は、この EPM 技術を環境技術に応用し、新たな研究領域を開拓することを目指している。その意味で、本研究を目標達成の重要な一歩と位置付けており、地球環境に調和した新技術を産業界に提供することも、本研究の目的の 1 つになっている。

3. 研究の方法

(1) 原理

Fig.2 によって本研究で適用した均一粒径 Si 球の製造原理を解説する。ノズルより液体金属ジェットを一定速度で落下させ、ノズル直下で電磁力を間欠的に印加することにより、一定間隔でジェットにくびれを生じさせる。このくびれはジェット下流で成長し、ジェットは液滴に分断する。電磁力は、誘導コイルにより印加される高周波

磁場とジェット内の誘導電流との相互作用によって発生し、ジェットを絞る作用をする。この電磁力を局所的に印加するために、コイルと液ジェットの間にはコンセンレータを設置する。

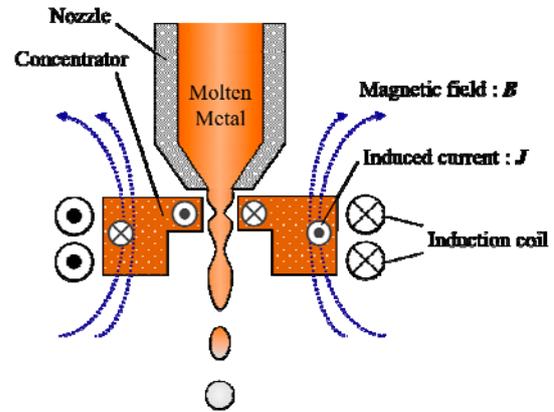


Fig.2. 溶融金属ジェットの液滴分断原理

液ジェットに電磁力を有効に作用させるためには、(1)式で示される交流磁場の浸透厚さ(表皮厚さ)がジェット半径の 1/2 以下にする必要がある。

$$\delta = \sqrt{1 / \pi f_e \mu \sigma} \quad (1)$$

ここに f_e は周波数、 μ は真空透磁率、 σ は導電率である。液ジェットの半径を 0.5mm とし、溶融 Si の導電率 $\sigma = 1.33 \times 10^6 \text{ S/m}$ を考慮すると、高周波磁場の周波数は $f_e = 3.3 \text{ MHz}$ となる。Fig.3 に間欠磁場発生時のコイル電流の印加パターンを示した。

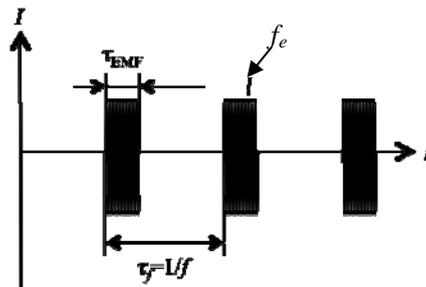


Fig.3. コイル電流の印加パターン
コイル電流の印加時間 τ_{EMF} は印加周期 τ_f に対して任意に選べるが、本研究では $\tau_f / \tau_{EMF} = 1/2$ に固定した。

(2) ジェット擾乱による液滴生成の予備試験

液ジェットへの間欠電磁力の印加によって所望の液滴径が得られることを定性的に確認するために、一定周波数の音波を水ジェットに印加する試験を行った。本試験では、3 つの小型スピーカーをジェットの周囲に配置して、アクリル製の集音器の出口をジェットに向けて音圧を加えるもので、生成する水

滴の直径と印加周波数との関係を調査した。

ついで、融点が常温付近の Ga を用い、コンデンサに溜めた電気をパルス状にコイルに給電し、これによる溶融 Ga ジェットの分断の様子を調査した。

以上の試験により、ジェットに加わる擾乱による液滴生成の基本的現象について予備的情報を得ることを目的とした。

- (3) 間欠電磁力印加による Ga 液滴生成試験
Fig.4 に実験装置の概要を示した。

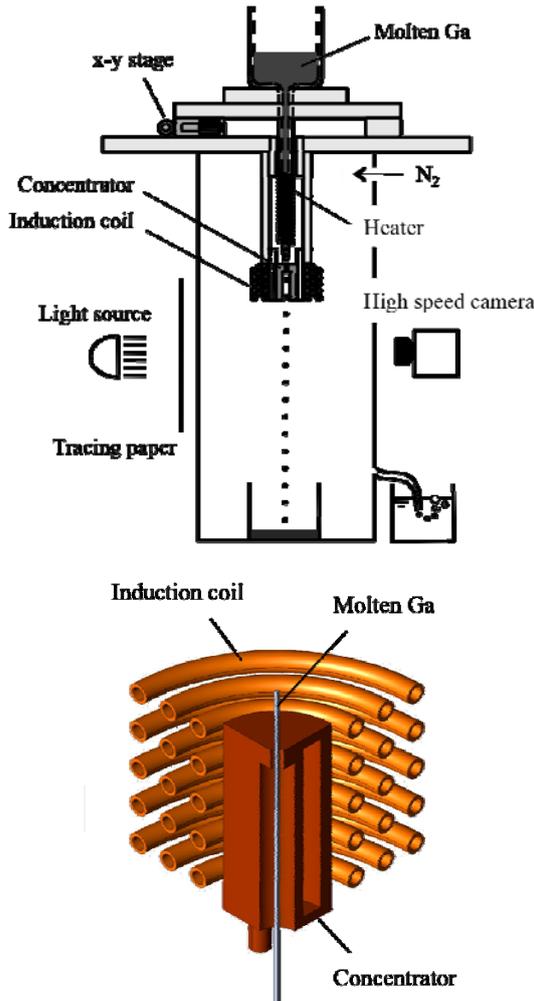


Fig.4. 溶融 Ga を用いた実験装置概要

Fig.4 の上図は実験装置全体図、下図はコイル周辺部の4分割図である。溶融 Ga は液溜よりガラス製ノズルを通して落下させ、ノズル直下に電磁力を集中するためのコンセントレータおよびコイルを設置した。コイルは水冷銅管を 15 ターン巻いたもので、コンセントレータがコイル内に収まるようになっている。コンセントレータは縦に 2 つに分割できるようにしており、ジェット入口の口径を狭めて電磁力が集中するようにした。落下する液滴を、照明したトレーシングペーパー

を背面として、前面から高速度カメラで撮影し、その 2 次元画像から球相当径を求めた。溶融 Ga の酸化を防ぐため、実験装置内には N_2 ガスを流した。

主たる実験条件は以下の通りである。

高周波周波数 $f=3.06\text{MHz}$

高周波電流 $I=51.25\text{A}$

間欠印加周波数 200~1000 Hz

ノズル径 1.0~1.2 mm

ジェット速度 1.47~1.68 m/s

- (4) 電磁力分布に関するシミュレーション

本研究の実験条件で、液体金属ジェットに加わる電磁力分布を、市販の電磁界解析ソフト JMAG Designer を用いて推算した。その結果を Si 粒子製造条件の設定に用いた。

4. 研究成果

- (1) 予備試験結果

音波の印加による水ジェットからの水滴の生成試験結果について述べる。内径 0.6mm のノズルから 2m/s の初速で落下させた水ジェットに、様々な周波数の音を印加して、ジェットの分断によって生成する水滴の直径を調査した結果を Fig.5 に示す。

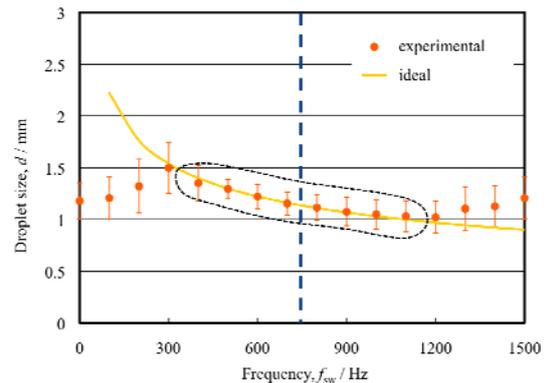


Fig.5. Droplet size as a function of imposed sound frequency.

図中の縦の破線は後述するジェットの優先擾乱周波数(約 750Hz)であり、この周波数でジェットは自然に分断する。実線は、印加した音の周波数で液滴に分断する場合の液滴径であり、周波数の増加とともに減少する。測定された液滴径は、300 から 1100 Hz の範囲でこの実線によく一致している。この範囲の液滴径のばらつきは中心値の 15%以内であり、ほぼ均一な液滴が生成している。周波数が 300Hz 以下では、液滴径は理論値より小さくなっているが、これは音の周波数が後述する優先擾乱周波数より十分小さくなるために、ジェット自体の擾乱で液滴に分裂することによる。自然擾乱による平均液滴径は 1.13mm で、周波数 0 の場合の液滴径にほぼ一致している。一方、周波数が 1100Hz 以上

になると、液滴径は理論値よりも大きくなっているが、これは液滴間の距離が小さくなるために、落下中に液滴が合一するためである。

つぎに熔融 Ga のジェットにパルス状に電磁力を印加した場合について述べる。Fig.6 は、14,700 C の電気を溜めたコンデンサから 1 ターンのコイルに電流を流し、ジェットに単発パルス電磁力を印加した場合のジェット形状の写真である。なお、この場合のノズル径は 1.2mm、電流は 7,670 A であった。図より、電磁力印加直後にはジェットの変形は見られないが、時間の経過とともにジェットがくびれ、24 ms 後には完全に分断している。このように、電磁力のパルス印加によって生成するジェット表面のわずかなくびれが下流に行くにつれて成長し、最終的には分断に至ることが分かった。

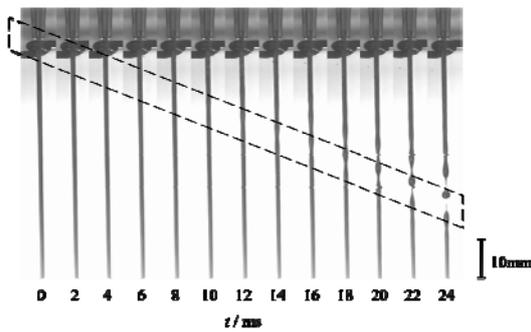
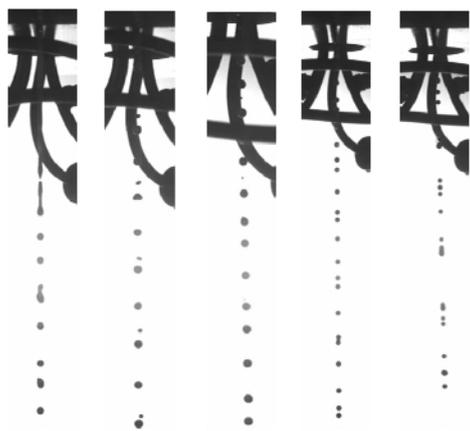


Fig.6. パルス電磁力印加による熔融 Ga ジェットの分断

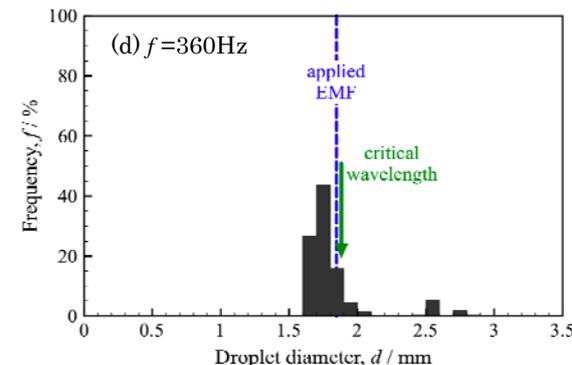
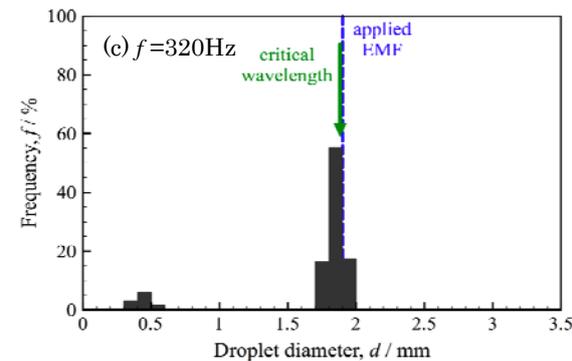
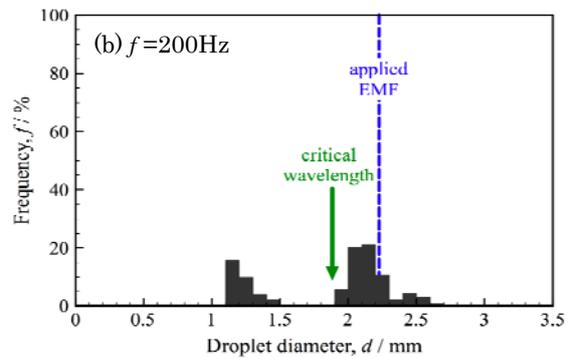
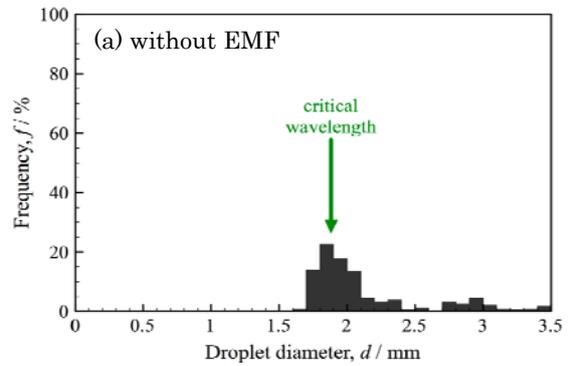
(2) 間欠電磁力印加による液滴生成試験結果
ノズル径 $d_0=1.0$ mm, ジェット速度 $v_0=1.47$ m/s の条件で、間欠印加周波数を種々変えた場合の液滴分裂の写真を Fig.7 に示す。



w/oEMF 200Hz 320Hz 360Hz 500Hz
Fig.7. Droplet generation at $d_0=1.0$ mm.

図より、電磁力を印加しない場合(左端)には、液滴も認められるが、分裂に至らない液柱や合一途中の液滴も見られる。 $f=200$ Hz で磁場

を間欠印加した場合には、ほぼ同じサイズの液滴の間に、小さな液滴(サテライト滴)の生成が見られる。320Hzになると、液滴は同一サイズとなり、サテライト滴もほとんど見られない。360及び500Hzでは、近接した液滴が互いに合一し始める。液滴の二次元映像から球相当径を求め、その分布を調べた結果を、各周波数について Fig.8(a)~(e)に示した。



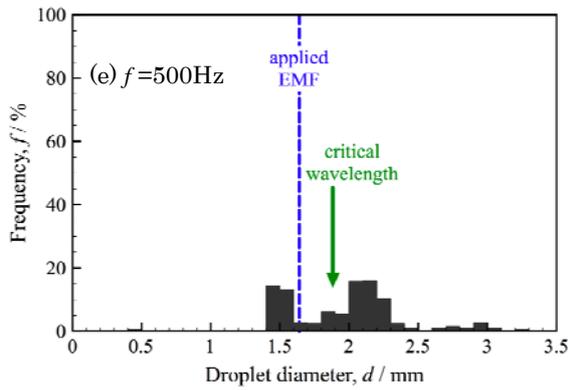


Fig.8. Size distribution of droplet at different frequencies for $d_0=1.0\text{mm}$, $v_0=1.47\text{m/s}$.

図中の縦の破線は印加した周波数で液滴が分断する場合の液滴径、矢印は(2)式で示されるジェットの優先擾乱波長から計算される液滴径である。

$$\lambda = \sqrt{2\pi} d_0 \sqrt{1 + \frac{3\eta}{\sqrt{\rho\gamma}d_0}} \quad (2)$$

ここに d_0 はノズル径, η は粘度, ρ は密度, γ は表面張力である。(2)式は線形安定性理論から導出された理論式である。これは、液ジェットに自然に発生する擾乱の中で、優先的に成長する波長の擾乱を表している。

まず Fig.8(a)は、電磁力を印加しない場合であるが、ほぼ(2)式の波長に対応する液滴径に中心値を有し、それより大きな径にも分布が広がっている。(b)の 200Hz の場合には、電磁力の印加周波数は優先擾乱周波数より低く、液滴径の分布には電磁力の間欠印加周波数に対応する液滴径付近と、それより小さい径のところにピークが見られる。これは Fig.7 に見られるサテライト滴に対応する。(c)は電磁力の間欠印加周波数と優先擾乱周波数とが同じ場合であるが、液滴径は 1.7~2mm の狭い範囲に集中しており、良好な液滴生成条件が得られている。それでも液滴径が約 0.5mm のところに小さなピークが見られ、少数のきわめて小さいサテライト滴が生じていることが分かる。(d)は電磁力の間欠印加周波数が優先擾乱周波数よりわずかに大きい場合であるが、液滴径は電磁力間欠印加周波数に対応する径よりもやや小さく、また大きな径の液滴もわずかに生じている。(e)は電磁力の間欠印加周波数が優先擾乱周波数よりかなり大きな場合であり、1.5mm 程度の小さな液滴と、それが合してできた 2mm 以上の大きな液滴が生成している。

以上より、優先擾乱周波数に間欠印加周波数を一致させることで、均一な液滴が得られることが明らかになった。

(3) 電磁力分布

Table 1 に溶融 Ga と溶融 Si について、液ジェットに作用する電磁力の最大値(コンセントレータに隣接するジェット表面の電磁力)の計算結果を示した。計算はジェット径が 0.5mm の場合について行った。

Table 1. Comparison of maximum electromagnetic force between Ga and Si.

Metal	Ga	Si
$T_M/^\circ\text{C}$	29.8	1410
$\sigma/10^6 \text{S}\cdot\text{m}^{-1}$	3.85	1.33
δ/mm	0.147	0.249
$F_{\max}/10^6 \text{N}\cdot\text{m}^{-3}$	5.12	1.06

表は上段より融点、導電率、表皮厚さ、最大電磁力である。Siの導電率はGaに比して 1/3 程度であり、表皮厚さは約 1.7 倍厚い。最大電磁力は Ga の約 1/5 になっている。この計算条件は、本研究で使用した試験装置の最大電流値で求めたもので、Ga と同程度の分断効果を得るためには、(i) 周波数を高くする、(ii)出力の大きい装置を用いる、(iii)コンセントレータの形状を変更する、の3つの対策が考えられる。

Fig.9 および 10 に Ga と Si について、コンセントレータ内の液ジェットに加わる電磁力の軸方向分布を示した。

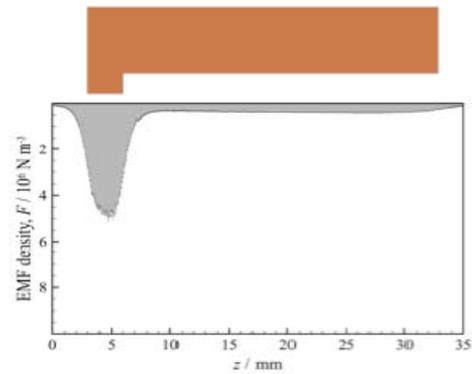


Fig.9. Force distribution in Ga jet.

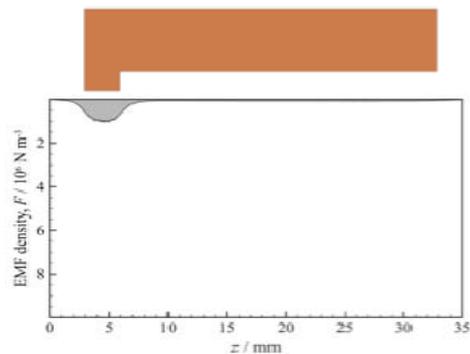


Fig.10 Force distribution in Si jet.

図より、ジェットにはコンセントレータ凸部の近傍に電磁力が集中している。凸部以外の部分は、コイルから発生する磁場を集め、発生する誘導電流を凸部に集中する役割をもつが、コンセントレータの形状を工夫することにより、さらに効率の良い電流集中が可能と考えられた。そこで、様々な形状のコンセントレータについて同様の計算を行い、その効果を調べた。結果を Fig.11 に示す。

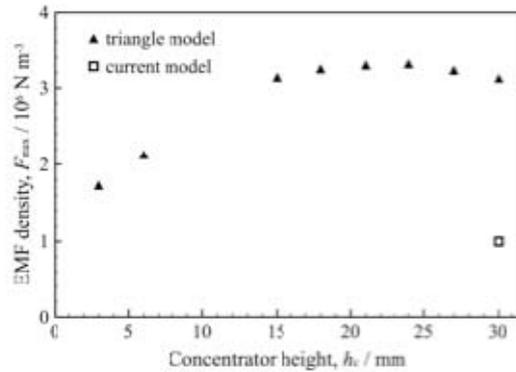


Fig.11. Effect of shape and size of concentrator to maximum force.

計算は、断面が三角形で1つの頂点がジェットに近接するような配置について、コンセントレータの高さを種々変えて行った。図中の□印は、本研究で採用したコンセントレータであり、▲印が三角形の断面のコンセントレータである。図より、三角形のコンセントレータでは、高さが15mm以上であれば電磁力はほぼ一定となり、本試験に使用したものの3倍以上の電磁力が得られている。

本研究では溶融Siを用いた実験は行えなかったが、今後は以上の結果に基づいて、球形Si製造に取り組むと共に、太陽電池への応用について検討していきたい。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- 1) K.Imanishi, S.Shimasaki, S.Taniguchi, V.Bojarevics: Manufacturing of Spherical Silicon for Solar Cell by Electromagnetic Pinch Force, Proc. of the 3rd Asian Workshop and Summer School on Electromagnetic Processing of Materials, Shanghai (2008), pp.211-214 査読無
- 2) V.Bojarevics, S.Taniguchi, K.Pericleous: Droplet generation with Modulated AC Electromagnetic Field at Nozzle Exit, Proc. of 5th International Symposium. on Electromagnetic Processing of Materials, EPM2006, Sendai, Japan, pp.259-264 査

読有

[学会発表] (計4件)

- 1) S.Taniguchi, J.S.Park, S.Shimasaki, S.Umeki, K.Ueno: Application of EPM to Environmental Technology, 30th anniversary of the EPM group of the SIMAP laboratory, Mar.25-27, Grenoble, France (2009)
- 2) 今西健太郎、嶋崎真一、谷口尚司、V.Bojarevics: 電磁力利用による太陽電池用Si球の製造、日本金属学会秋期講演大会(熊本) 2008年9月23日
- 3) S.Taniguchi, S.Shimasaki, K.Ueno, S.Umeki, K.Takahashi, Y.Kanno: Some Applications of EPM to Environmental Technology, Sino-German EPM Workshop, Oct.16-18, Shanghai (2007)
- 4) 嶋崎真一、佐藤誠、谷口尚司、V.Bojarevics: 電磁力を用いた液体金属ジェットからの均一粒径金属球の製造、日本鉄鋼協会秋期講演大会(岐阜) 2007年9月20日

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称: 導電性粒子の製造方法および製造装置

発明者: 嶋崎真一、谷口尚司、今西健太郎
権利者: 東北大学

種類・番号: 特願 2009-087767

出願年月日: 平成21年3月31日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者 谷口尚司(TANIGUCHI SHOJI)

東北大学・大学院環境科学研究科・教授

研究者番号: 00111253

(2) 研究分担者 嶋崎真一

(SHIMASAKI SHIN-ICHI)

東北大学・大学院環境科学研究科・助教

研究者番号: 00447145