

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月10日現在

機関番号：11101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656598

研究課題名（和文） シリカの直接還元による太陽電池級シリコン製造プロセスの基礎研究

研究課題名（英文） The fundamental research of the direct reduction process from silica to solar grade silicon

研究代表者

神本 正行 (KAMIMOTO MASAYUKI)

弘前大学 北日本新エネルギー研究所

研究者番号：80356823

研究成果の概要（和文）：

現行の太陽電池用Si製造プロセスでは、珪石から金属Siを製造してトリクロロシランを得、それを精製した後に還元を行い、結晶Siを製造している。

本研究で対象とする結晶Si製造法は、珪砂から得た高純度SiO₂から直接太陽電池級Siを製造する革新的省エネプロセスである。

本研究の目的は、このプロセスの素反応の熱力学平衡と反応速度、ならびにガスの流れを実験及び計算により詳細に解析し、プロセスおよび還元炉の構造設計に必要な知見を得ることである。原料である酸化シリコンは、炭素で還元されるときに様々な副生成物を經由してシリコンに還元される。還元プロセスの歩留まりを向上させるには、この副生成物を制御することが不可欠である。副反応式によれば、副生成物であるSiOとSiCからシリコンが生成されるので、副生成物の反応制御が重要である。

熱力学計算によると、このSiOとSiCの反応プロセスでは、炭素が存在すると常にSiCが優先的に生成されることが分かった。炭素の消費量、そしてSiCの生成量と消費量を精密に制御しながら、誘導加熱法で加熱することによって、シリコンを得ることが出来た。

研究成果の概要（英文）：

Si manufacturing process for solar cells now composes of the reduction of highly purified trichlorosilane made from the metal Si. Metal Si is obtained by the reduction of Silica stone. high grade SiO₂ which got the target crystal Si manufacturing method from silica sands by this research from The production process we proposed in this research is the direct reduction from high purity silica to solar grade silicon. It is the innovative energy-saving process of manufacturing the solar grade Si.

The purpose of this research is to analyze the flow of the thermodynamic equilibrium of the elementary process of this process, a rate of reaction, and gas in detail by an experiment and calculation, and to acquire knowledge required for the mechanical design of a process and a reduction reactor. The raw silicon oxides are reduced to silicon through various by-products, with carbon. It is indispensable to control this by-product for improvement of the yield of a reduction process.

Because silicon is only generated from by-products, SiO and SiC, reaction control of the by-products is important. According to thermodynamic calculation, by the reaction process of this SiO and SiC, when carbon existed, it turned out that SiC is always generated preferentially. Finally, we obtained silicon by induction-heating method, with precisely controlling carbon consumption, and the production and consumption of SiC.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・エネルギー学

キーワード：自然エネルギーの利用

1. 研究開始当初の背景

現行の太陽電池用Si製造プロセスでは、珪石から金属Siを製造してトリクロロシランを得、それを精製した後に還元を行い、結晶Siを製造している。本研究で対象とする結晶Si製造法は、珪砂から得た高純度SiO₂から直接太陽電池級Siを製造する革新的省エネプロセスである。

かつてNEDOのプロジェクトでこの反応プロセスの研究が行われ（昭和63年NEDO成果報告書）、この方法の可能性は示されたが、現実のプロセスとしては実現していない。最近原料となるSiO₂の高純度化技術が進化したことから、応募者らは再度このプロセスの実現に向けた検討を開始することとした。

2. 研究の目的

現在、太陽電池市場の大半は結晶Si太陽電池が占めており、短中期的には今後も主流であることが予想される。したがって太陽光発電の大量導入を図るには、半導体級Siに頼る現在のシリコン供給体制から脱却し、安価な太陽電池級Si製造プロセスを確立する必要がある。

本研究は、大量に存在する珪砂を高純度化したシリカを出発点とし、これを炭素で直接還元して太陽電池級Siを得る製造プロセスに関するものであり、大幅な省エネと低コスト化が期待される。本研究の目的は、このプロセスの素反応の熱力学平衡と反応速度、並びにガスの流れを実験及び計算により詳細に解析し、プロセスおよび還元炉の構造設計

に必要な知見を得ることである。

3. 研究の方法

本研究で取り上げる「高純度SiO₂を出発物質として一つの還元炉で直接太陽電池級Siを製造するという方法」は、エネルギー効率および経済性の観点から極めて

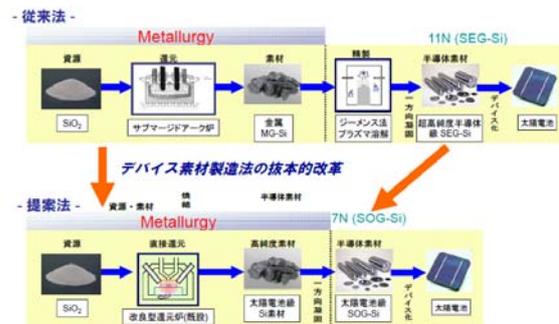


図1 従来法と本提案法のプロセス図

て革新的であり、魅力的である。しかし、多数の素反応からなる高温プロセスのため、還元炉の構造および温度制御の精度によって収率およびエネルギー効率が

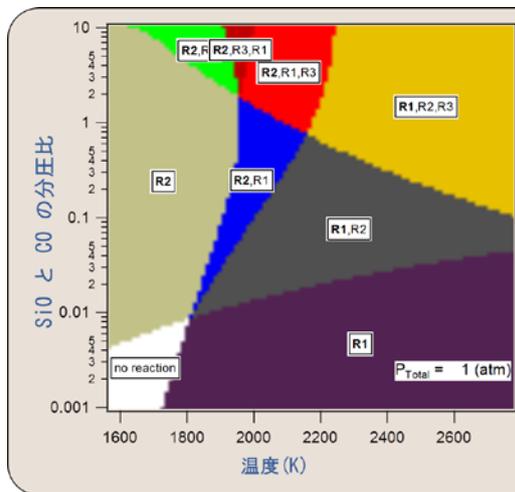


図2 SiO₂の炭素還元反応の熱力学的相図

大きく左右される。この還元プロセスは、過酷な高温条件の下で進行する複数の素反応からなる複雑な反応で、また発生する気体をどう制御するかも重要な課題であり、還元炉の構造も含めて様々な種類の検討が必要とされる極めてチャレンジングな研究である

まず、シリカの還元プロセスを構成する各素反応の平衡条件を熱力学計算により詳細に解析し、熱分析による速度論解析ならびに還元炉による実験結果と合わせ、還元炉の構造と反応プロセスを数種類選定する。

次に選定した還元炉の構造と反応プロセスについて、ガスの流れの影響を考慮した素反応の詳細な解析を行い、最適な還元炉の構造と反応プロセスを得るために必要な知見を得る。

4. 研究成果

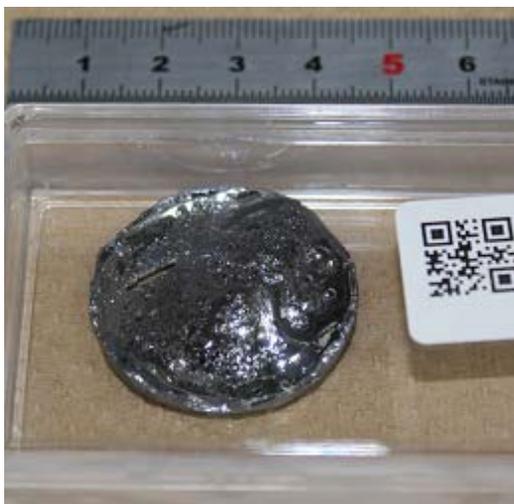


図3 最適化された反応プロセスによって得られたシリコンの写真（反応時間30分、約5g）

原料である酸化シリコンは、炭素で還元されるときに様々な副生成物を經由してシリコンに還元される。還元プロセスの歩留まり

を向上させるには、この副生成物を制御することが不可欠である。副反応式によれば、副生成物であるSiOとSiCからシリコンが生成されるので、副生成物の反応制御が重要である。熱力学計算によると、このSiOとSiCの反応プロセスでは、炭素が存在すると常にSiCが優先的に生成されることが分かった。すなわち還元剤である炭素の残存量がシリコンの生成に大きな影響を及ぼすことが示唆されるため、原料の混合・供給プロセスの最適制御が重要であることがわかった。

基本的な指針としては、ガス相であるSiOを出来るだけ逃さないで反応させることが焦点となる。

炭素の消費量、そしてSiCの生成量と消費量を精密に制御しながら、誘導加熱法で加熱することによって、シリコンを得ることが出来た。

5.5. 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 M. Kamioto: “Renewable Energy in Japan at the Turning Point”, Proc. 4th International Conference on Sustainable Energy and Environment (SEE 2011) (2012.2).

② M. Kamimoto, H. Miyakawa: “Reduction of Electric Power Consumption by ICT in Residential Buildings - Demonstration Experiments at Condominiums and Dormitory -”, Proc. 4th International Conference on Sustainable Energy and Environment (SEE 2011) (2012.2).

〔学会発表〕（計3件）

- ① Masayuki Kamimoto, “Renewable Energy in Japan at the Turning Point”, 4th International Conference on Sustainable Energy and Environment (SEE 2011) (招待講演), 2012/2/28, Bangkok
- ② 神本正行, “温暖化緩和技術としての再生可能エネルギーへの期待”, 低温工学協会東北北海道支部 2010年度市民講演会, “北日本のエネルギーと交通新時代”, 青森, (2010.11).
- ③ 神本正行, “北日本新エネルギー研究所の目指す研究・教育と社会との連携”, 第2回弘前大学国際シンポジウム“エネルギー・環境国際シンポジウム in 青森”, 弘前, (2010.10).

〔図書〕（計1件）

- ① Kamimoto Masayuki(共著), O. Edenhofer, R. Pichs-Madruga, Y. Sokona, K. Seyboth, P. Matschoss, S. Kadner, T. Zwickel, P. Eickemeier, G. Hansen, S. Schlömer, C. von Stechow (eds)]. “Special Report on Renewable Energy Sources and Climate Change Mitigation, Working Group III of the Intergovernmental Panel on Climate Change”, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1075 pp.(2011).

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

○取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

神本 正行 (KAMIMOTO Masayuki)
弘前大学・北日本新エネルギー研究所・教授
研究者番号：80356823

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

佐藤 裕之 (SATO HIROYUKI)
弘前大学・理工学研究科・准教授
研究者番号：10225998

伊高 健治 (ITAKA KENJI)
弘前大学・北日本新エネルギー研究所・准教授
研究者番号：40422399