

本間 敬之

早稲田大学 先進理工学部
教授

固液界面反応設計による新規高純度シリコン材料創製プロセスの構築

§ 1. 研究実施体制

(1) 早大グループ

① 研究代表者: 本間 敬之 (早稲田大学先進理工学部・教授)

② 研究項目

- ・珪藻土を原料とする高純度シリカ生成プロセスの開発
- ・新規高温迅速反応の解析とプロセスの検討
- ・太陽電池構造形成連続プロセスの開発

(2) 京大グループ

① 主たる共同研究者: 野平 俊之 (京都大学エネルギー科学研究科・准教授)

② 研究項目

- ・シリカ直接電解還元反応における反応プロセス系の高度化
- ・シリカ直接電解還元反応における連続化プロセスの開発
- ・新規化学還元プロセスの開発

§ 2. 研究実施の概要

近年のエネルギー問題を解決する手段としてシリコン太陽電池の利用が広まっているが、その原料となる高純度シリコンのより低コストで安定な生産プロセスの構築が課題となっている。本研究では、固液界面系に着目してプロセス内反応を高精度に制御することによって、そうした生産プロセス構築のための要素技術開発を進めている。具体的には(1)シリカの高純度化プロセスの開発、(2)シリコン生成のためのシリカ還元プロセスの開発、(3)太陽電池構造連続形成プロセスの開発を進めている。

(1)シリカの高純度化プロセスの開発

本研究では、珪藻土を新たなシリカ源として見据え、その水溶液中に含まれる不純物を高効率に除去するプロセスの提案を目的に、洗浄プロセスの最適化や、マイクロリアクターを用いた高精度な不純物抽出反応の探索を進めている。今年度は特に、軽元素、中でもホウ素を抽出除去するプロセスのさらなる高効率化を目指したマイクロリアクターの改良を行い、短時間で 6N レベル以上のシリカ溶液が得られることを見出した。また、顕微ラマン分光法を用いてマイクロリアクター内部における抽出反応の進行を計測するシステムを立ち上げ、マイクロリアクターの最適設計に必要な基礎データを取得する体制を整備できた。

(2)シリコン生成のためのシリカ還元プロセスの開発

本研究では、高純度化シリカから太陽電池用シリコンを高効率に生成することを目的に、電解によるもの、熱によるもの、及び還元剤を用いた反応を利用したものの3種の還元プロセスに着目してその開発、改良を進めている。

(2)-1 電解還元プロセス

今年度は特に、プロセスのさらなる最適化に向けた粒状シリカの還元反応、あるいはイオン液体を用いた Si(IV) イオンの還元反応のメカニズムの解析を進めた。前者では、粒子表面と粒子内部における還元反応性の相違が観察され、還元速度における粒状シリカ粒径の重要性が改めて示唆された。後者では、 Si(IV) イオンの還元の際に生じる Si 電析膜内部へのイオン液体の混入メカニズム解析に必要な、再現性の良好な電気化学測定セルを設計した。

(2)-2 熱還元プロセス

今年度は特に、プロセスの高精度化に向けた熱還元反応のメカニズムを理解するための反応進行過程の可視化を試み、原料となる $\text{SiO}_2\text{-SiC}$ の組成比とレーザー照射時間の違いにより、 Si 生成の効率を制御できることを確認した。

(2)-3 化学還元プロセス

今年度は特に、 Ca 及び Mg を還元剤としたプロセスを試行し、 950°C の加熱によって Si 生成が達成されることを確認した。

(3)太陽電池構造形成連続プロセスの開発

本研究では、連続的な太陽電池セル形状形成プロセスの開発を目的に、柱状基体及び微細パターン構造への電析技術を試行している。柱状基体の電析では、 $200\mu\text{m}$ の緻密な Si 膜の形成に成功した。また微細構造への電析では、部分的ではあるものの、 35nm 径のパターンに対する析出に成功した。

§ 3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

論文詳細情報(国際)

1. Tetsuya Toba, Kouji Yasuda, Toshiyuki Nohira, Rika Hagiwara, Koki Ichitsubo, Kenta Masuda and Takayuki Homma, “Fundamental Study on Reduction Rate for Electrolytic Reduction of SiO₂ Powder in Molten CaCl₂”, ECS Transactions, vol. 50, No. 11, pp.119-126, 2013 (DOI:10.1149/05011.0119ecst)
2. N. Matsuo, Y. Matsui, Y. Fukunaka and T. Homma, “Solvent Extraction using Microchannel System for High Purification of Silica”, ECS Transactions, vol. 50, No. 48, pp.103-108, 2013 (DOI:10.1149/05048.0103ecst)
3. Yoko Ishibashi, Takahiro Akiyoshi, Jason Komadina, Yasuhiro Fukunaka and Takayuki Homma, “The Effect of the Deposition Conditions on the Electrodeposition of Si Nanopillars in TMHATFSI”, ECS Transactions, vol. 50, No. 48, pp.117-126, 2013 (DOI:10.1149/05048.0117ecst)
4. J. Komadina, T. Akiyoshi, Y. Ishibashi, Y. Fukunaka, T. Homma, “Electrochemical quartz crystal microbalance study of Si electrodeposition in ionic liquid”, Electrochimica Acta, vol. 100, pp.236-241, 2013 (DOI:10.1016/j.electacta.2012.07.043)
5. Tetsuya Toba, Kouji Yasuda, Toshiyuki Nohira, Xiao Yang, Rika Hagiwara, Koki Ichitsubo, Kenta Masuda, Takayauki Homma, “Electrolytic Reduction of SiO₂ Granules in Molten CaCl₂”, Electrochemistry, vol. 81, No.7, pp.559-565, 2013 (DOI: 10.5796/electrochemistry.81.559)
6. Xiao Yang, Kouji Yasuda, Toshiyuki Nohira, Rika Hagiwara, Takayuki Homma, “Reaction Behavior of Stratified SiO₂ Granules during Electrochemical Reduction in Molten CaCl₂”, Metallurgical and Materials Transactions B, 2014, in press.
7. Nobufumi Matsuo, Yuki Matsui, Yasuhiro Fukunaka, and Takayuki Homma, "Boron Extraction with 2-Ethyl-1,3-hexanediol 1 Using a Microchannel Device for High-Purity Source of Solar-Grade Silicon", J. Electrochem. Soc., in press.

(3-2) 知財出願

平成 25 年度特許出願件数 (国内 3 件)

CREST 研究期間累積件数(国内 6 件)