

電磁力間欠印加による溶融 Si ジェットからの 太陽電池用均一径 Si 球の高速製造

研究代表者 東北大学 大学院環境科学研究科 助教 嶋崎 真一

共同研究者 東北大学 大学院環境科学研究科 教授 谷口 尚司

1 緒言

21 世紀に入り、様々な地球環境問題が人類社会の持続性を脅かす問題として社会的注目を浴びている。特に危険視されている地球温暖化問題は、主に化石燃料を燃やすと発生する CO₂ の大気中への蓄積が原因となっており、毎年 1.9 ppm の増加速度で確実に増加し、50 年弱で危険レベルの 425-500 ppm に到達する。温暖化の問題に加えて気候変動も危惧されており、巨大な台風やハリケーンの発生、多雨地帯の激しい豪雨や乾燥地帯の更なる少雨化など、人類の生活を危うくする諸現象の発生が予測されている。

CO₂ を発生しないエネルギー源には、原子力、水力、風力、太陽光、バイオマス等があるが、先の東日本大震災による福島原発事故で、我が国が主軸に据えてきた原子力利用への不安が一気に広がったことにより、太陽光発電に大きな期待が寄せられるようになった。太陽電池の問題はコストにあり、日本ではエネルギーの損益分岐点 (Energy-payback time) は 2 年以下なのに対し、コストの損益分岐点 (Profit-and-loss point) は約 15 年となっている。現在の太陽電池は単結晶あるいは多結晶シリコンのインゴットを薄く切断した板状のセルが主流になっており、切断による材料の歩留まり低下が著しく、これがコスト削減の障害になっている。

日本のクリーンベンチャー 21 で開発中の球状 Si 太陽電池 (Fig.1) は、溶融 Si から直接 Si 球を製造するために、発電量当たりの Si 量が 1/5 に抑えられるという特徴がある[1]。これは原料費の大幅な削減を可能とし、引いては発電コストの大幅な削減を実現する。また、太陽電池モジュールが可撓性を有することや、光を透過するモジュールを製作することができるなどの他にない特徴をもつ。このような利点を有しながら十分に普及していないのは、均一な粒径の Si 球を高速で製造できる技術が未開発であるためである。インクジェットと同様の機構で均一径の金属粒子を製造する方法はあるが[2, 3]、数 100 ミクロン以下のサイズに限られており、球状太陽電池に必要な 1 mm クラスの均一径の球を効率よく製造する方法は、現在のところ存在していない。

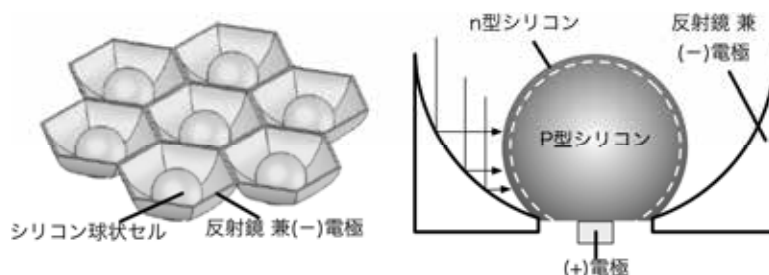


Figure 1: A Schematic of the spherical-cell technology.

これまでに研究代表者らのグループでは、熔融 Ga ジェットに一定の時間間隔で間欠的に磁場を印加し、ジェットを均一な径の液滴に分断する方法を開発してきた[4]。液ジェットの周囲にコイルを配置し、コイルに高周波電流を間欠的に印加することによって、液ジェット表面に間欠的な擾乱を発生させる。この擾乱が発達することによってジェットが分断され、均一な液滴が形成される。

熔融 Si は熔融温度においては比較的高い導電率を有するため、熔融 Ga で成功した上記の方法を適用することは原理的には可能である。しかし、Si は融点が高く (約 1420℃)、導電率は Ga の約 1/3 であり、現有の装置の大幅な変更が必要である。そこで、本研究では電磁界解析によってコンセントレータの最適設計を行い、それに基づいたコンセントレータの製作と実機適用性の検証を行った。

2 電磁界解析

2.1 コンセントレータの原理

ジェットに強い電磁力を作用させるためには、起磁力 (アンペア・ターン) を大きくする必要がある。コイルのターン数を増やすことで起磁力を大きくすることは可能であるが、一方で電磁力が作用する領域が大きくなり、細いジェットを細かく効果的に分断することが難しくなる。

コンセントレータは、大きなコイルで得られる電磁力をジェットのごく狭い領域に集中させるために考案されたものである。コンセントレータはコイルの内側に配置された水冷の銅製パーツであり、内側に小さな突起のついた円筒形をしている。この円筒は縦に 2 つに分割されており、コイルによって誘起された誘導電流が、内側の突起部に集中して流れるようになっている。このコンセントレータを介することによって、電磁力をジェット近傍のごく狭い領域に集中的に印加することが可能となる (Fig.2 参照)。

本研究においては、コンセントレータの形状を変化させることで、ジェットに加わる電磁力がどのように変化するかを調査し、コンセントレータ形状の最適化を行う。

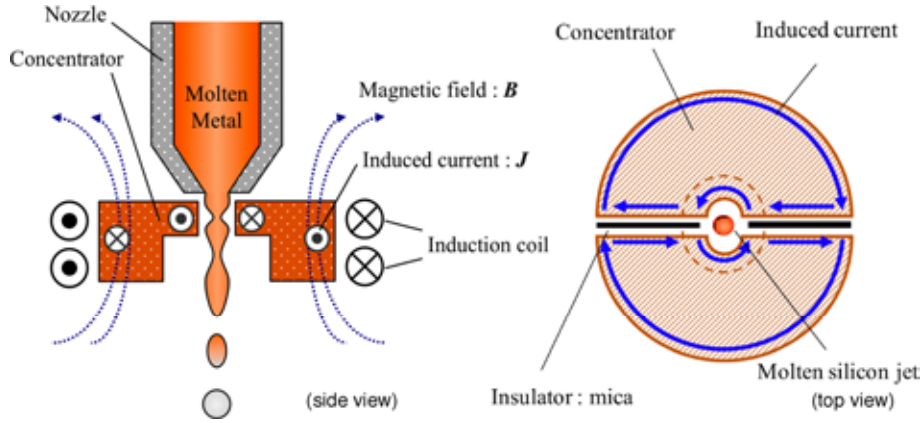


Figure 2: Schematic diagrams of electromagnetic droplet generator.

2.2 基礎式

今回の電磁界解析では、電磁場の解析で最も一般的な $\mathbf{A}$ - φ 法を用いた。以下に $\mathbf{A}$ - φ 法について概略を示す。電磁流体力学近似を用い、流体の流れが電磁場に与える影響を無視できるものとする、Maxwell の方程式は以下のように記述される。

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} \quad (1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (4)$$

ここで $\mathbf{H}$ は磁界強度、 $\mathbf{J}$ は電流密度、 $\mathbf{E}$ は電界強度、 $\mathbf{B}$ は磁束密度である。磁場に関する構成方程式と拡張されたオームの法則より、以下の関係が成立する。

$$\mathbf{B} = \mu \mathbf{H} \quad (5)$$

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (6)$$

ここで μ は透磁率、 σ は導電率である。このとき拡張されたオームの法則において、流体の流れが電磁場に与える影響については無視している。 $\mathbf{A}$ - φ 法におけるベクトルポテンシャル $\mathbf{A}$ とスカラーポテンシャル φ は次のように定義される。

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (7)$$

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \nabla \varphi \quad (8)$$

Eq.(1)における電流密度 $\mathbf{J}$ は、強制電流密度 $\mathbf{J}_0$ と誘導電流 $\mathbf{J}_e$ の和として、以下の式で表される。

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}_0 + \mathbf{J}_e \quad (9)$$

Eq.(6)および(8)より、誘導電流 $\mathbf{J}_e$ は次式で表される。

$$\mathbf{J}_e = -\sigma \left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} + \nabla \phi \right) \quad (10)$$

以上より、Eq.(9)は、

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathbf{A} \right) = \mathbf{J}_0 - \sigma \left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} + \nabla \phi \right) \quad (11)$$

また Eq.(4)より、

$$\nabla \cdot \left[\mathbf{J}_0 - \sigma \left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} + \nabla \phi \right) \right] = 0 \quad (12)$$

Eq.(11)と(12)を連立して解くことにより $\mathbf{A}$ と ϕ が得られ、Eq.(7)と(8)により $\mathbf{B}$ と $\mathbf{E}$ が求められる。溶融金属に作用するローレンツ力は $\mathbf{F} = \mathbf{J} \times \mathbf{B}$ であり、ベクトルポテンシャルを用いて

$$\mathbf{F} = \nabla \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathbf{A} \right) \times (\nabla \times \mathbf{A}) \quad (13)$$

として与えられる。

本研究では流動解析との連成は行わないため、ジェットを溶融金属の物性を有した静止液柱とし、電磁力の作用によるジェットの変形に伴う電磁力の変化は考慮しない。また、コイルおよびコンセンレータの対称性から三次元 1/4 モデルで解析を行った。

2.3 Ga モデル実験用コンセンレータ

2.3.1 計算条件

現有の Ga モデル実験で用いているコイルおよび電源の仕様は、コイルのターン数 15、電流実効値 51.2 A、電流周波数 3.06 MHz である。また、Ga ジェット噴出用のノズル径は 1 mm、溶融 Ga の導電率は $3.85 \times 10^6 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$ 、比透磁率は 1 として計算を行っている。

計算に用いたコンセンレータの形状を Fig.3 に示す。本研究では

- (a) かぎ型 (現有の Ga 用コンセンレータ)
- (b) 直角三角形
- (c) 二等辺三角形

とし、さらに(b)と(c)については斜辺を凹状の曲線とした場合についても検討を行った。コンセンレータのサイズは全て外径 20 mm、ジェット通過用の穴の径 2.6 mm である。

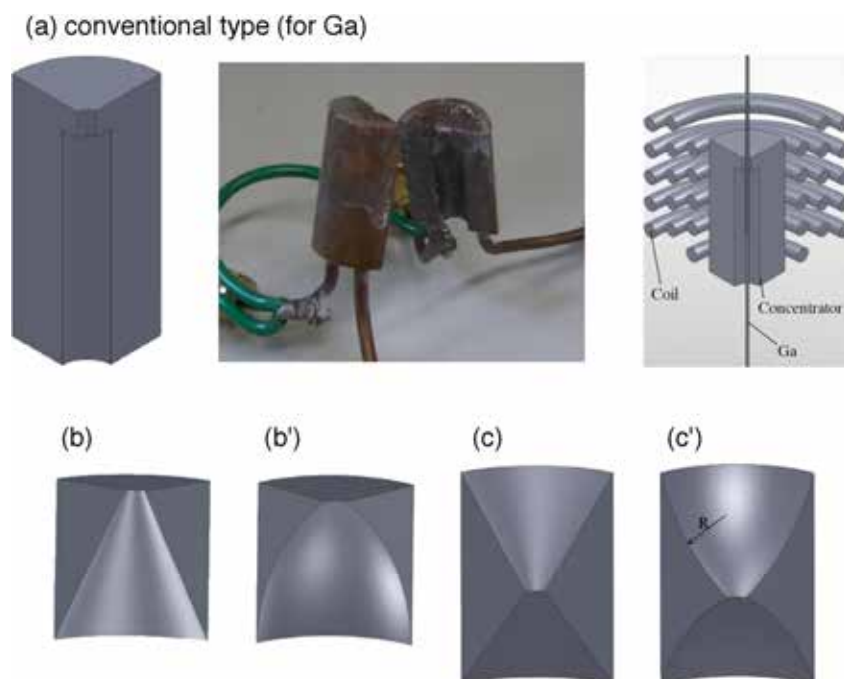


Figure 3: Schematic diagrams of concentrators for electromagnetic field analysis (1/4 model).

2.3.2 計算結果および考察

Fig.4 に Ga ジェット表面に作用するローレンツ力密度の分布を示した。図中で茶色の領域で示されているのがコンセンレータの断面形状である。コンセンレータがない場合には、コイル高さ全域にわたって弱いローレンツ力が分布しているが、コンセンレータを用いることによって突起部の近傍に電磁力が集中していることがわかる。コンセンレータによる電磁力の集中の度合いは、(a) < (b) < (b') < (c) < (c') の順に大きくなっている。Fig.4 のピーク値(すなわち、溶湯に作用するローレンツ力密度の最大値 $F_{\max}$) をみると、現行のコンセンレータ(a)では $F_{\max} = 7.2 \text{ MN} \cdot \text{m}^{-3}$ だったものが、(c') の形状に変更することで $F_{\max} = 31 \text{ MN} \cdot \text{m}^{-3}$ と 4 倍強に増大していることが分かる。

直径約 1 mm の液滴を生成するためには、直径 1 mm 未満の細いジェットを数 mm 間隔で分断する必要がある(この間隔は、ジェットの噴出速度に依存している)。そのため、ローレンツ力はある程度狭い領域に集中している必要がある。Fig.4 よりローレンツ力密度の半値幅を見ると、(c') が最も狭くなっており、この点でも(c') のコンセンレータが最も好ましいと考えられる。

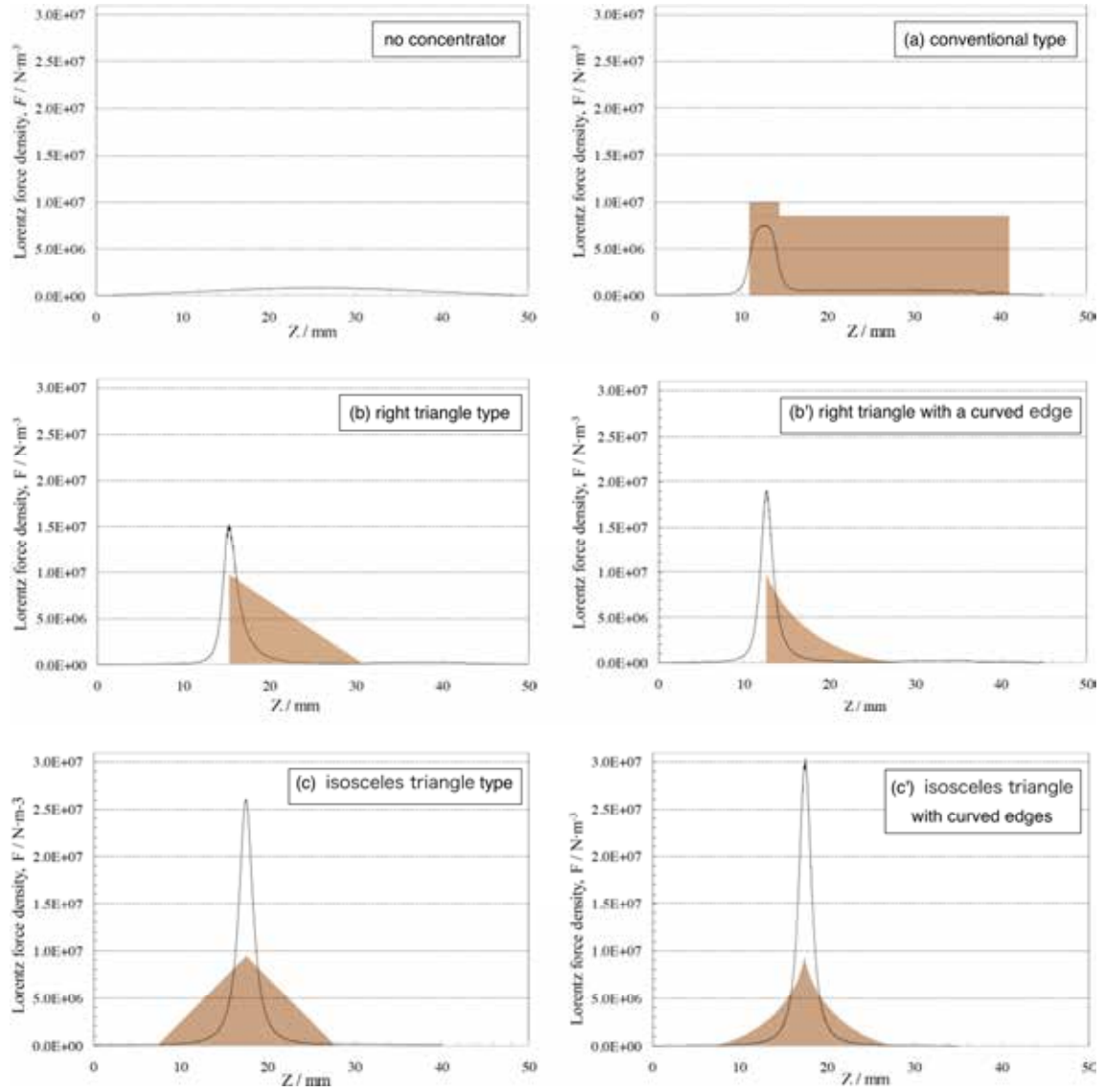


Figure 4: Lorentz force distribution on jet surface.

(a)と(c)の二つの形状の電流密度ベクトルを Fig.5 に示す。(a)の場合ではコンセントレータの下部の電流が突起部に集中すること無く水平方向に流れているだけなのに対して、(c)の形状ではコンセントレータ全体の電流が突起部に斜めに集中して流れ込んでいる。

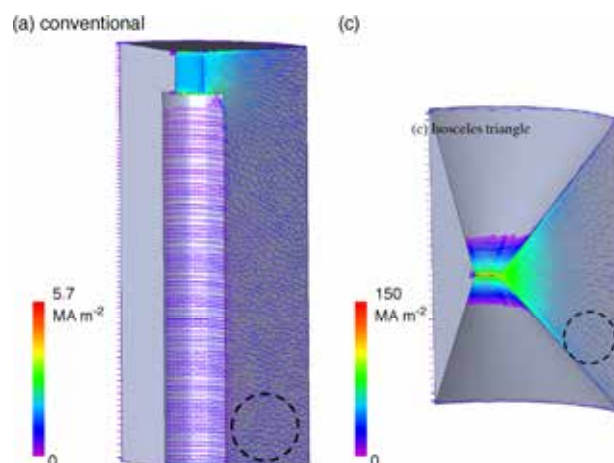


Figure 5: Vector field of induced current density on concentrator.

以上の解析結果より、現行のコンセントレータを改良する場合、コンセントレータの断面形状は二等辺三角形型とすると良いことがわかった。また、断面形状における二等辺三角形の二辺を曲線にすることで、より電流を集中させることができることがわかった。

2.4 Si 実験用コンセントレータ

2.4.1 計算条件

電磁場による液体金属の流動や加熱特性が変化する臨界値はジェット半径 r と表皮厚さ δ の比を用いて $r/\delta \approx 2.3$ で与えられ、 $r/\delta > 2.3$ の場合は電磁場の流れに与える影響が大きくなることが知られている[5]。熔融 Si の導電率は $1.33 \times 10^6 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$ であり Ga の約 1/3 であるため、同じ周波数の電流を用いた場合には表皮厚さが Ga の場合よりも厚くなる。そのため、熔融 Si ジェット分断用にはより高い周波数の 13.56 MHz の電源（ダイヘン社製：RGA-50E）を選択した。またコイルも電源に併せて新規に設計し、ターン数 8、コイル電流実効値 96.17 A とした。

これまでの Ga の解析結果より、二等辺三角形型の断面を有するコンセントレータが最も効率よく電流を集中できることが明らかにされている。一方で、実際に装置を運用する際には、以下の点を考慮する必要がある。

- ・実験の行いやすさを考慮すると、コンセントレータ上面は平面の方が良い。
- ・コンセントレータの水冷のため、下部には冷却水循環用の水冷導管を接続する必要がある。

これらを考慮に入れ、コンセントレータの断面形状として

- (A) 台形型
- (B) 台形型（1 辺が曲線）

(C) 台形型（1 辺が曲線）＋四角形型の三種類を候補とした（Fig.6 参照）。コンセンレータの外径は 46 mm、高さ 45 mm、ジェット通過用の穴の径 2.5 mm である。

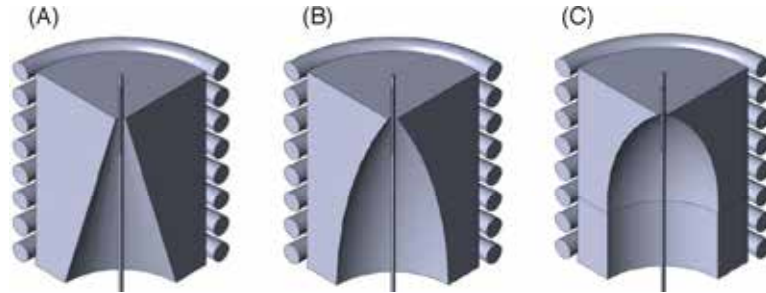


Figure 6: Schematic diagrams of concentrators for electromagnetic field analysis (1/4 model).

2.4.2 計算結果および考察

解析によって得られたジェットに加わるローレンツ力密度の最大値を Table 1 に示す。表より(C)の形状の時にローレンツ力密度が最大となっていることから、(C)が最も効率よく電流を集中させていると考えられる。

Table 1: Maximum value of Lorentz force on Si jet surface.

Concentrator type	Maximum Lorentz force, $F_{\max} / \text{MN} \cdot \text{m}^{-3}$
(A)	63
(B)	112
(C)	143

コンセンレータ側面を流れる電流密度のベクトル図を Fig.7 に示す。図には電流密度の最大値もあわせて示してある。図より(A) < (B) < (C)の順で、電流密度の最大値が大きくなっていることが分かる。

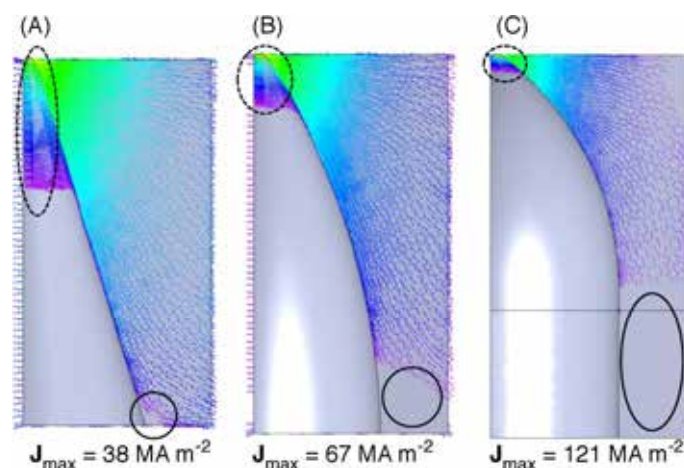


Figure 7: Vector field of induced current density on concentrator.

以上より、Si ジェット分断用のコンセントレータとして形状(C)を採用した。実際に銅で作製したものを Fig.8 に示す。写真はコンセントレータの半分であり、このパーツを 2 個組み合わせて実験に用いる。



Figure 8: Photograph of concentrator for molten Si jet.

3 Si ジェット分断実験

3.1 実験方法

新たに製作したコンセントレータを用いて、実際に Si ジェットの分断実験を行った。実験装置図を Fig.9 に示す。

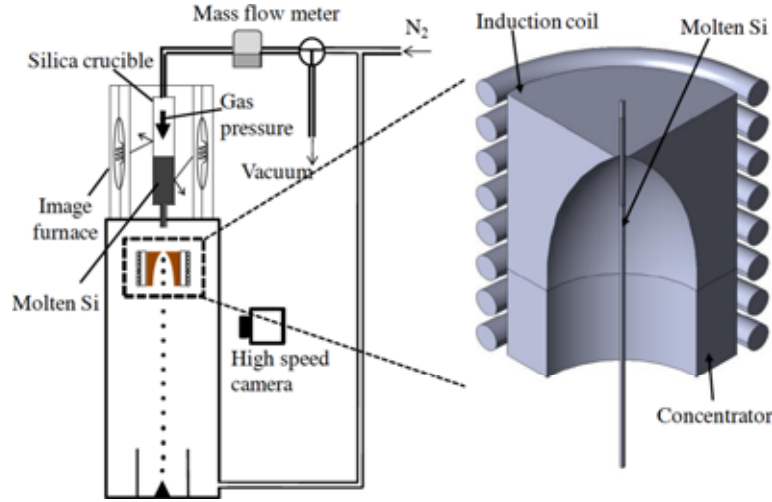


Figure 9: Schematic diagram of Si experiment apparatus (Left) and EMF applied device (Right).

試料は純度 99.95% の塊状 Si を用いた。石英ガラス製の坩堝に 6.5 g の Si を挿入し、IR イメージ炉で 1500℃ で溶解した後、坩堝内を窒素ガスで加圧して石英ノズル（内径 1 mm）から Si ジェットを噴出させる。ジェットは窒素ガスチャンバー内を落下してコンセンレータを通過して、その後、液滴に分断される。

電磁力印加用の電源には、商用のプラズマ発生用高周波電源（ダイヘン社製、RGA 50E）を用いた。周波数は 13.56 MHz、コイル電流の実効値は 43 A である。この高周波電流を変調して 300 Hz で on-off を繰り返し、間欠的に磁場をジェットに印加した。なお、この 300 Hz という周波数は、後述する優先擾乱波長よりも広い分断間隔に相当する。

本研究の試験装置では、液滴の落下距離が高々数十 cm しかなく、落下中に液滴を凝固させ固体粒子として回収することは不可能である。そのためジェット分断の観察は高速度ビデオカメラで行っている。撮影した画像から液滴の投影面積を求め、等体積球に換算して液滴のサイズを算出した。

3.2 結果および考察

分断した液滴を高速度ビデオカメラで撮影した画像と、その画像から求めた液滴径の分布を Fig.10 に示す。図中には以下の式で計算される優先擾乱波長でジェットが分断された場合の液滴径も併せて示してある。

$$\lambda_{op} = \sqrt{2\pi d_0} \sqrt{1 + \frac{3\eta}{\sqrt{\rho\gamma d_0}}} \quad (14)$$

ここで d_0 はジェット径、 η は粘度、 ρ は密度、 γ は表面張力である。液中表面に発生した擾乱は様々な波長を有しているが、そのうち最も擾乱の成長速度が大きいもので液中

が分断されるとして、Rayleigh は液中の分断長さを評価した[6]。式(14)は Rayleigh の理論を粘性流体に拡張したものであり[7]、一般にジェットはこの波長で分断される傾向がある。式(14)より明らかな通り、優先擾乱波長は物性値とジェット径にのみ依存しており、同一のジェットから生成される液滴径は常に一定となる。

電磁力を印加していない場合には、液滴径分布のピークはこの優先擾乱波長と一致していることが分かる。しかし、液滴のサイズは広い分布をもっており、均一径に分断は出来ていない。

一方で 300 Hz の周期で電磁力を間欠的に印加した場合には、ジェットは印加した電磁力の周期でほぼ均一に分断されており、液滴サイズの分布は非常に狭くなっている。また、その液滴径分布のピークは優先擾乱波長によって生成するものよりも大きくなっている。これは優先擾乱波長と異なった間隔であっても、間欠電磁力の周波数を制御することにより任意の大きさの液滴が得られる可能性を示唆している。

今回の実験では、IR イメージ炉の容量の制約により溶解した Si 量が 6.5 g と少なかつたため、安定したジェットを噴出することが困難であった。そのため、ジェット速度がばらついたり、噴出方向がわずかに傾いたりしている。ジェットが安定していない場合には、優先擾乱波長以外の擾乱が増えるため、生成される液滴径のばらつきが大きくなる。今回の実験においてはジェットが不安定であったにも関わらず、電磁力が有効に作用し均一な液滴が得られていることが確認された。

4 結論

電磁力を集中させるためのコンセントレータの電磁界解析を行い、コンセントレータの形状が電磁力に及ぼす影響を調査し、最適な形状を検討した。その結果、二等辺三角形の断面を持つものが、最も効率よく電磁力を集中させることができるということが分かった。また、三角形の斜辺を凹状の曲線とすることで、さらに電磁力を集中させることが可能となった。これらの成果を踏まえ、Si ジェットの分断用のコンセントレータを設計・製作した。

実際に作成したコンセントレータを用いて、電磁力間欠印加による Si ジェットの分断実験を行い、間欠磁場印加によって Si ジェットを均一の周期で分断できることが分かった。すなわち、本方法を用いて均一なサイズの Si 球を製造することが可能であることが示された。

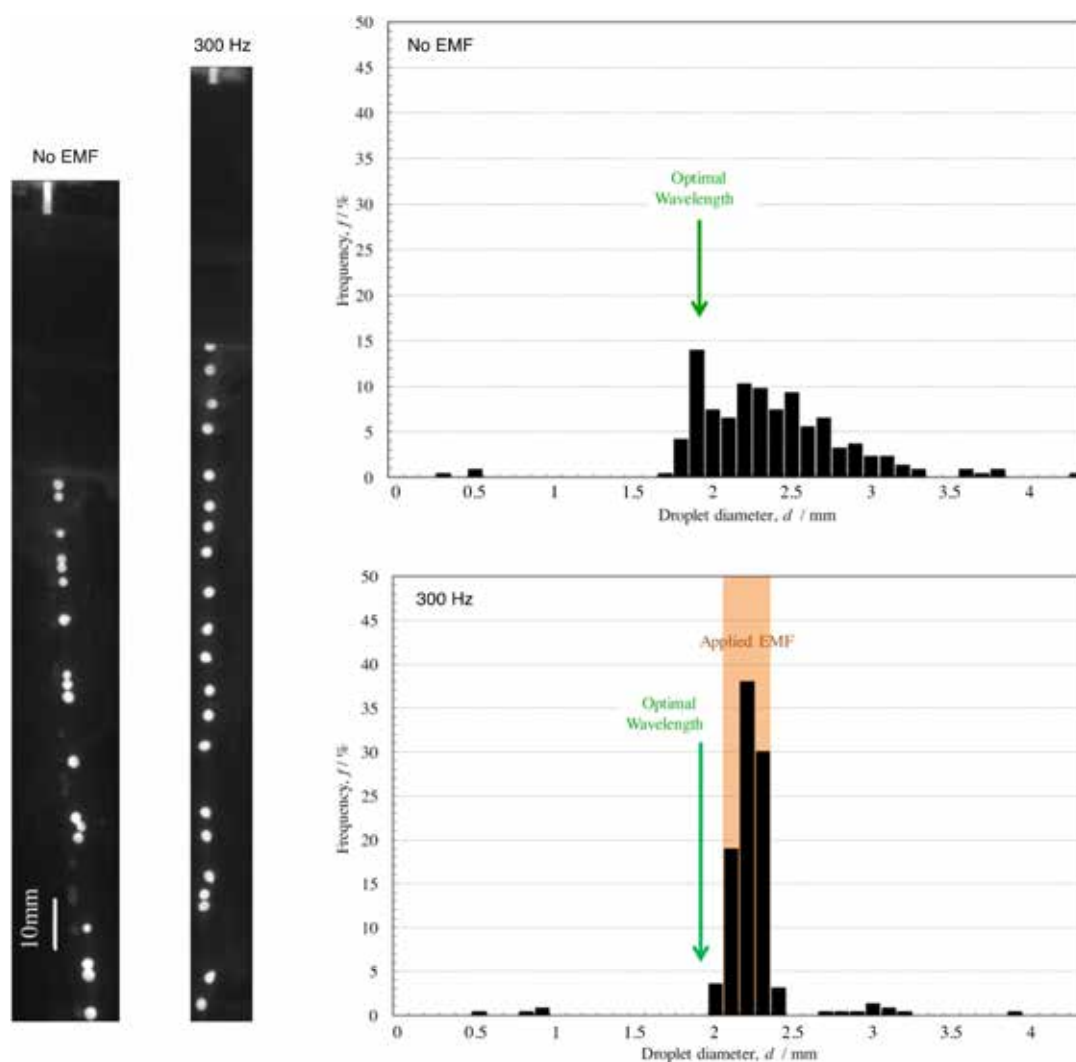


Figure 10: Size distribution of Si droplet.

謝辞

本研究の遂行にあたり公益財団法人 JFE21 世紀財団より資金援助を受けました。付記して深甚なる謝意を表します。

参考文献

- [1] “Saving Silicon”, *Nat. Photonics*, **1** (2007), 558–559.
- [2] K. Takagi, S. Masuda, H. Suzuki, and A. Kawasaki, “Preparation of monosized copper micro particles by pulsed orifice ejection method”, *J. Crystal Growth*, **47** (2006), 1380–1385.
- [3] S. Pillai and T. Ando, “Modeling of the in-flight solidification of droplets produced by the uniform-droplet spray process”, *Int. J. Therm. Sci.*, **48** (2009), 1494–1500.

- [4] S. Shimasaki and S. Taniguchi, “Formation of uniformly sized metal droplets from a capillary jet by electromagnetic force”, *Appl. Math. Model.*, **35** (2011), 1571–1580.
- [5] 谷口 尚司, 菊池 淳, “高周波誘導炉内の液体金属の流れ”, 鉄と鋼, **70** (1984), 846-853.
- [6] L. Rayleigh, “On the stability of jets”, *Proc. Lond. math. Soc.*, **11** (1878), 4-15.
- [7] C. Weber, “Zum Zerfall eines Flüssigkeitsstrahles”, *Z. angew. Math. Mech.*, **4** (1931), 136-154.