学位論文審査結果の概要

氏 名	BOUCETTA ABDERAHMANE
学位論文審査委員氏名	主査 伊髙 健治
	副査 佐藤 裕之
	副査 井岡 聖一郎
	副査 久保田 健
	副査 小畠 秀和
論 文 題 目	Study of High-Purity Carbothermic Reduction Process for Solar-Grade
	Silicon
	(高純度炭素熱還元法による太陽電池級シリコンの製造プロセスの研究)

審査結果の概要(2,000字以内)

当学位論文は、太陽電池用シリコンの新しい低コスト・省エネルギー製造プロセスである直接還元法に関する研究をまとめた論文であり、申請者が直接還元法に必要な造粒プロセス及び凝固方法に関して実験を行い、機構の解明とプロセス条件の最適化を行った結果を中心に記述している。直接還元法は、現行のシーメンス法に比べて工程が少なく、エネルギー消費量を抑制出来るという利点があるが、原料であるシリカの高純度化が不可欠で、高純度化によって得られる粉末シリカをそのまま還元しようとすると、粉体中に滞留する反応ガスが原料を飛散させるという問題があった。この問題を解決するために、予備工程としてシリカの造粒が不可欠であるが、造粒のために添加するバインダーについての系統的な知見が不足していた。本研究では、バインダーとしてポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルロース、でんぷん、ショ糖を用いる高純度シリカの直接還元法について、系統的な実験を行ない、バインダー、造粒体の強度、還元シリコンの収率に相関を見出した。さらに、反応容器のアスペクト比(縦横比)に特徴を持つバッチ処理用の新しい坩堝を開発した。

第一章は、太陽電池の性能と普及について、歴史的に俯瞰して、太陽電池材料としてのシリコン材料の重要性を論じており、本論文の背景となる現在の太陽電池級シリコンの需給関係と将来的な太陽電池の普及を踏まえた需給関係と低コスト化に向けた技術開発の必要性について論じている。

第二章は、理論的背景として、シリコンの還元について熱力学的に論じており、エリンガム図と熱力学的相図から、シリコン還元に必要な条件を論じている。また様々なシリコン製造方法について長所・短所について比較しながら論じている。

第三章は、実験方法を詳述し、誘導加熱炉や造粒装置などのプロセス装置や電子顕微鏡や X 線回折装置などの分析装置について、原理・構造を解説し、本論文の研究に関連する特化した手法や注意点について論じている。

第四章は、本論文の主要な実験結果である造粒方法とその最適化について論じ、反応の過程におけ

る相変化と造粒プロセスの指針について論じている。バインダーを適切に選択することが重要であり、 造粒体の強度やバインダー自体を加熱したときの残留物の有無によって、収率に影響を与えている可 能性について論じている。

第五章は、前章までの結果を総合的に論じるとともに、本研究の課題と将来について論じている。 このように、本研究では、低コスト太陽電池用シリコン製造プロセスである直接還元法について、 プロセス上必要な造粒工程において使用するバインダーと中間生成物の分離に関しての新しい知見 を得ている。特に、将来の工業化に向けてプロセス設計の指針となりうる知見を得ている点は高く評 価でき、合格と判定する。

学位論文の基礎となる参考論文

- (1) A. Boucetta, R. Benioub, A. Chahtou, S. M. Heddadj, T. Ogasawara, Y. Furuya, S. Hamzaoui, K. Itaka, "Optimization of the Granulation Binders of High-Purity Carbothermic Reduction for Solar-Grade Silicon", Materials Transactions, 57(11), 1936-1944, 2016/10.
- (2) R. Benioub, <u>A. Boucetta</u>, A. Chahtou, S. M. Heddadj, M. Adnane, Y. Furuya, K. Itaka, "Development of Real-Time Weight Monitoring System for the Carbothermic Reduction Process of Silica", Materials Transactions, **57**(11), 1930-1935, 2016/10.
- (3) K. Itaka, T. Ogasawara, A. Boucetta, R. Benioub, M. Sumiya, T. Hashimoto, H. Koinuma, Y. Furuya, "Direct Carbothermic Silica Reduction from Purified Silica to Solar-Grade Silicon", Journal of Physics: Conference Series, 596, 012015, 2015.