

学位論文審査報告

小林, 孝

佐々木, 直栄

太田, 一司

白濱, 升章

他

<https://hdl.handle.net/2324/16722>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 26 (1), pp.35-46, 2004-06. 九州大学大学院総合理工学府
バージョン :
権利関係 :

 学位論文審査報告

氏名(本籍) 小林 孝(山口県)
 学位記番号 総理工博乙 第334号
 学位授与の日附 平成15年12月22日
 学位論文題目 電子機器における熱設計の最適化手法に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 藤井 丕夫
 (副査) 〃 〃 本田 博司
 〃 〃 柿本 浩一

論文内容の要旨

21世紀に入り、通信とコンピュータの技術融合による電子機器の高性能化がますます進んでいる。その結果、小型の携帯機器から人工衛星に至る電子機器全般で発熱量が増大しており、正常動作を実現する熱対策技術がキーテクノロジーとなっている。さらに、電子機器の開発競争が世界規模で激化する中で所望の冷却性能を満足するだけでなく、熱制御安定性(ロバスト性)や機器の小型・軽量性を兼ね備えた総合価値の高い熱設計を短期間に実現する必要がある。これらの要求に応えるには、設計初期から高精度な熱流体解析を行い、製品重量・サイズ・コストといった他の制約条件とのトレードオフを検討し、最適な熱対策構造を作りこむ必要がある。つまり、これまでの後手の『熱対策設計』から、理論的裏付けに基づく事前の『総合的な最適化熱設計』へのパラダイムチェンジが急務となっている。しかしながら、これまでは回路基板間での複雑な自然対流現象、筐体表面の輻射効果やヒートパイプ性能の実装配置への依存性といった電子機器に特有な複合伝熱現象を全体規模で精度良く、且つ高速に解析できる実用手法がなかった。特に熱設計分野への最適化手法の適用に至っては、どのような変数のとり方が良いのか、何を最適化すれば良いのかさえも十分に研究されていないのが実情である。

以上の背景のもとに、本論文では多様な電子機器製品および冷却デバイスにおける複合伝熱現象を高速かつ高精度に予測可能な熱設計手法の確立を目的として、伝熱工学の研究資産である汎用整理式を節点回路網法(NNM)や数値流体力学(CFD)と融合させたコンパクト解析手法の提案を行った。また、試作実機による実験結果との比較を行って、手法の妥当性および有効性を実証した。更に、数理最適化手法を効果的に組み合わせて熱設計のインテリジェント化を図ることで、より総合的な限界熱設計手法が実現できることを示した。本論文は、以下の6章から構成されている。

第1章では、電子機器の熱設計の高度化に有効な数値解析技術および最適化手法の概要と従来の研究動向を整理して現状の問題点を明らかにするとともに、本論文の意義と目的を明確にした。

第2章では相変化を伴う新型ループヒートパイプ(LHP)のマクロなシステム挙動解析に、実験整理式をベースとした節点回路網法システムを適用して、最大熱輸送量の重力依存性を予測可能な計算モデルを構築した。また、機器実装を考慮した全システムループ長7500mmというLHP装置において、蒸発器と凝縮器の上下の位置関係を3モードに変化させた際の最大熱輸送量を実測し、計算値との比較を行った。計算結果は実験結果と同等な挙動を予測しており、十分に実用的であることを確認した。更に、本計算モデルを用いたパラメータ解析から、最大熱輸送量に影響をおよぼす圧力損失の分布や動作挙動の把握が可能となり、LHPの性能改善および最適化設計への指針が得られた。

第3章では自然対流、基板伝導、輻射といった複合伝熱現象を呈する自然換気筐体の全体規模でのCFD解析を高精度に実現するために、合理的なメッシュ分割粗さを実測データとの比較から明らかにした。また、領域毎の発熱密度が異なる鉛直平行基板群が16枚実装された自然換気型筐体に関する一連の実験と解析から、開口部の影響や加熱量分布による流量分配特性にともなう熱伝達率の局所性を明らかにした。更に、自然換気系の鉛直平行平板間の局所ヌセルト数は自然対流であるか強制対流であるかにかかわらず、平板間の平均流速が求められれば既存の整理式を用いて概算できることも確認した。

第4章では携帯電子機器などの密閉型の小型電子機器の熱設計に有効な計算速度と精度とのバランスに優れた携帯電子機器の系を対象とした実用的な数値解析モデル手法を提案した。次に、本手法を実際の機器設計に適用し、筐体底面のマグネシウム合金ダイカストを熱拡散板とした世界で最薄・最軽量な密閉化パソコン筐体を実現した。なお、試作実機による温度の実測結果は設計解析での予測結果と良く一致し、その有効性を実証した。また応用研究として、遺伝的アルゴリズムを組み合わせた発熱素子の最適配置設計法を提案し、初期設計フェーズへの応用可能性を実証した。更に、応答曲面法と組み合わせてパラメータ変更時の影響を予測可能な手法を提案し、量産設計フェーズにおける実用性を示した。

第5章では3次元CADの詳細形状データを用いた有限要素法解析および、応答曲面法とモンテカルロ法を組み合わせて、熱性能の安定性と軽量性を合理的にトレードオフする多目的最適化法を提案した。次に、

本手法を熱制御安定性と軽量性という競合する設計課題を有する人工衛星の構体パネル用ヒートパイプのジョイント形状の最適化設計に適用した。その結果、ジョイント部の接着厚さの製造ばらつきや軌道上での温度サイクル環境下での作動液の熱物性変化にも耐え得る制御性に優れた熱特性と軽量性を兼ね備えた付加価値の高いヒートパイプを実現できた。多目的最適化をはかった新型ヒートパイプでは、熱性能を現行品ヒートパイプと同等に維持したまま質量を約12%削減でき（当社比）、世界トップクラスの軽量性を実現した。構体パネル1枚あたりの質量の削減効果は3.5kg、衛星1機では約7kgであり、本手法の有効性が実証された。

第6章は、本論文の総括である。

論文調査の要旨

近年、通信とコンピュータの技術融合による電子機器の小型化、高性能化が著しく進展し、携帯機器から人工衛星に至る電子機器すべてで発熱密度が急増している。このため、機器の正常動作を保証する新しい熱対策技術の開発が緊急の課題となっている。一方、高性能機器の開発競争が世界規模で激化する中で、所望の冷却性能を満足するだけでなく、熱制御安定性や機器の小型・軽量性を兼ね備えた総合価値の高い熱設計を短期間に行うことも重要である。これらの課題を解決するには、設計初期から精度の高い熱流体解析を行い、製品重量・サイズ・コストといった他の制約条件とのトレードオフを考慮した、最適な熱対策構造をもつ機器の設計手法を確立する必要がある。つまり、従来の後手の『熱対策設計』から、理論的裏付けに基づく事前の『総合的な最適化熱設計』へと設計概念そのものの転換が必要となっている。しかし、回路基板や部品における電子機器に特有な複合伝熱現象を、筐体レベルで精度良くかつ高速に解析することは困難であり、また、数値最適化手法の熱設計分野への適用にいたっては、変数のとり方や最適化パラメータの選択さえも十分に解明されていないのが現状である。

本論文は流動・伝熱に関する従来の研究成果を節点回路網法（NNM）や数値流体力学（CFD）と融合させたコンパクト解析手法の提案を行うとともに、数値最適化手法を効果的に組み入れた熱設計のインテリジェント化を試み、多様な電子機器および冷却デバイスにおける複合伝熱現象を高速かつ高精度に予測できる熱設計手法を確立したものである。得られた主な知見は以下のとおりである。

(1) 従来の伝熱学および流体力学の研究成果をデータベース化し、節点回路網法とリンクさせることにより、高速で高精度の熱流動解析システムを構築し、

相変化を伴う新型ループヒートパイプ（LHP）のマクロなシステム挙動解析に適用している。解析結果がシステムループ長7500mmのLHP装置の最大熱輸送量の実測値と実用上十分な精度で一致することを確かめ、最大熱輸送量におよぼす蒸発器と凝縮器の上下の位置関係や圧力損失の分布などの影響を定量的に明らかにしている。

(2) 対流、伝導、輻射が共存する複合伝熱現象のCFD解析を機器筐体レベルで高精度に行うための合理的なメッシュ分割法を提案するとともに、携帯式で密閉型の小型機器の簡易モデル化法を提案し、計算速度と精度とのバランスに優れた実用的な数値解析手法を確立している。本手法を自然換気型筐体内の発熱密度が異なる鉛直平行基板群の伝熱に適用し、筐体開口部の影響や加熱量分布による流量分配特性を明らかにしている。一方、ノートパソコンの設計に適用した結果、筐体底面のマグネシウム合金ダイキャストを熱拡散板とする世界で最も薄くて軽量の密閉型パソコン筐体の製作に成功している。さらに、遺伝的アルゴリズムを導入し応答曲面法と組み合わせることにより、初期設計フェーズにおける発熱素子の最適配置設計法および量産設計フェーズにおけるパラメータ変更時の影響の評価方法を確立している。

(3) 3次元CADによる機器の詳細形状データを用いた有限要素法解析および応答曲面法とモンテカルロ法を組み合わせ、熱性能の安定性と機器の軽量性を合理的にトレードオフする多目的最適化法を提案している。本手法を人工衛星の構体パネル用ヒートパイプのジョイント形状の最適化設計に適用し、ジョイント部製造時の接着厚さのばらつきや軌道上での温度サイクル環境下での作動液の熱物性変化にも対応できる制御性に優れた熱特性と軽量性を兼ね備えた付加価値の高いヒートパイプの実現に成功している。

以上要するに本論文は、多様な実装形態をもつ電子機器の特性に適應した種々の熱流動解析手法を提案するとともに数値最適化手法を導入し、電子機器および冷却デバイスについて、汎用的で、高速かつ高精度の最適熱設計手法を確立したものであり、熱工学および設計工学に寄与するところが大きい。よって、博士(工学)の学位論文に値するものと認められる。

氏名（本籍） 佐々木 直 栄（秋田県）
学位記番号 総理工博乙 第335号
学位授与の日附 平成15年12月22日

学位論文題目 空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器の高性能伝熱管の開発に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 本田 博 司
(副査) 〃 〃 小山 繁
 〃 〃 藤田 恭 伸

論文内容の要旨

本論文は、空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器の空気側の伝熱促進技術開発が飽和状態にあるという現状を踏まえた上で、伝熱管側から空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器の伝熱性能向上を考えた場合に、従来の伝熱促進手法に従っていたらずらに管内熱伝達促進を図って空気側と冷媒側の熱抵抗バランスを悪化させるよりも現状において既に高いレベルにある内面螺旋溝付管の管内熱伝達特性を余すところ無く熱交換器単体性能として発揮させることが重要であるとの観点から、内面螺旋溝付管の管内熱伝達特性に最も影響を及ぼすであろう熱交換器組立時の拡管工程に着目し、内面螺旋溝付管の管内熱伝達特性および内面螺旋溝付管で構成された熱交換器の単体性能に及ぼす拡管による溝変形の影響を明らかにするとともに、拡管時の溝変形による熱交換器単体性能に及ぼす悪影響を最小限に抑えることが可能な内面螺旋溝付管の溝構成を提案するものであり、以下に示す9章で構成されている。

第1章は、緒論として、空調機をとりまく環境の変化からクロスフィンチューブ型熱交換器あるいはその主要構成要素である内面螺旋溝付管の高性能化が求められている背景について詳細に説明し、空気側伝熱促進技術開発が飽和状態にある現状における高性能化の問題点をとり上げて本研究に取り組む動機を示すとともに、空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器に関する従来の研究を、管内熱伝達特性、熱交換器性能特性、管内熱伝達特性予測、熱交換器性能特性予測、および空調機の開発全般に分類してその概要を体系的に整理し、熱交換器性能特性およびそれを構成する伝熱管の管内熱伝達特性に及ぼす拡管時の溝変形の影響に関する研究が皆無であることを示し、本研究の有用性を明らかにした。

第2章は、空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器の熱抵抗の分析について述べたものである。クロスフィンチューブ型熱交換器の全熱抵抗に占める冷媒(管内)側熱抵抗の割合は、空気(フィン)側に次いで大きく、空気側の伝熱促進技術開発の動向がほぼ飽和状態に達した現状においては内面溝付管の管内熱伝達率の向上が重要になっている点を強調する。また、

内面溝付管の形状最適化により管内熱伝達率が向上した場合と、熱交換器組立工程での機械拡管による溝変形の影響により管内熱伝達率が低下した場合において、熱交換器単体性能に及ぼす影響を比較し、機械拡管時の溝変形を抑制して内面溝付管が本来有する管内熱伝達特性を維持することが重要であることを強調する。

第3章は、市販されている空調機のクロスフィンチューブ型熱交換器から抜管した2種類の内面螺旋溝付管および比較管として用いた平滑管の断面形状および管内熱伝達特性を調査して、拡管前の素管の場合と比較した結果について述べたものである。管内熱伝達特性に及ぼす拡管による溝変形の影響を明らかにし、内面螺旋溝付管が本来有する管内熱伝達特性を十分に発揮するためには機械拡管時の溝変形を抑制することが重要であることを強調する。

第4章は、第3章において管内熱伝達特性に及ぼす機械拡管による溝断面形状変化の影響について考察した供試伝熱管に関して、特に、拡管後の管内蒸発熱伝達率が拡管前に比べてほぼ同等以上の値を示す要因について明らかにすることを目的として、更に微細な形状変化の様相を明らかにするために走査型電子顕微鏡(SEM)および表面粗さ計を用いて表面性状を調査し、拡管後の伝熱面には拡管前には観られない微細構造伝熱面や管軸方向のうねりが観察されることを明らかにする。

第5章は、3種類の内面螺旋溝付管および比較管として用いた平滑管で構成された計4種類の空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器を試作し、熱交換器単体での性能を比較するとともに、抜管した内面溝付管の溝形状変化を調査し、熱交換器単体性能に及ぼす拡管時の溝変形の影響を明らかにする。

第6章は、第5章で熱交換器単体性能に及ぼす拡管時の溝変形の影響を明らかにした3種類の内面螺旋溝付管および比較管として用いた平滑管で構成された計4種類のクロスフィンチューブ型熱交換器から抜管した各供試伝熱管の管内熱伝達特性を比較し、熱交換器を構成する内面螺旋溝付管の管内熱伝達特性に及ぼす拡管時の溝変形の影響を明らかにする。

第7章は、第5章で得られた各供試伝熱管で構成された空調機用クロスフィンチューブ型熱交換器の単体性能特性と、第6章で得られた熱交換器を構成する各供試伝熱管の管内熱伝達特性を熱交換器性能評価条件に拡張した結果とを比較することにより、熱交換器単体性能特性と管内熱伝達特性との関係を明らかにし、機械拡管時の溝変形を抑制することをはじめとする熱交換器単体性能向上に有効な手法について述べる。

第8章は、拡管時の溝変形を抑制する方法について概観し、最も実用的な手段の一つとして本研究で提案

する溝変形抑制型内面螺旋溝付管（犠牲拡管フィン付螺旋溝付管）の溝変形抑制メカニズムとともに、管内熱伝達特性および熱交換器単体性能特性を紹介し、犠牲拡管フィン付螺旋溝付管の有用性を明らかにする。

第9章は、本研究で明らかとなった事柄をまとめて述べる。

論文調査の要旨

空調機に使用されているクロスフィンチューブ型熱交換器では、管内を流れる冷媒が蒸発または凝縮し、管外を流れる空気と熱交換を行うことによって室内の冷房または暖房が行われる。一般に空気側の伝熱抵抗は管内側に比べて一桁以上大きいため、空気側にはアルミニウム製のクロスフィンを多数設けて伝熱面積を拡大するとともに、フィンの表面に種々の伝熱促進加工を施すことによって伝熱抵抗の削減をはかっている。しかし空気側の伝熱促進技術はすでに飽和状態に達しており、さらなる伝熱性能向上は望めない。一方、冷媒側の伝熱促進法としては内面螺旋溝加工が広く採用されているが、管をクロスフィンに密着させるために行われる機械拡管によって溝が変形し、伝熱性能が低下する、したがって、熱交換器性能のさらなる向上のためには機械拡管による伝熱性能低下を抑える技術の開発が望まれている。

本論文は、クロスフィンチューブ型熱交換器の流動・伝熱特性におよぼす従来型螺旋溝付き管の溝形状および機械拡管の影響を明らかにし、さらに機械拡管による伝熱性能低下を最小限に抑える機能を有する犠牲拡管フィン付き螺旋溝付き管を開発し、その流動・伝熱特性におよぼす溝形状および機械拡管の影響を明らかにしたものであり、得られた知見は以下のとおりである。

- (1) 数種類の螺旋溝付き管を用いてクロスフィンチューブ型熱交換器を試作し、その流動および蒸発・凝縮伝熱特性の測定と伝熱抵抗の分析を行っている。そして、機械拡管を行わない螺旋溝付き管の流動および蒸発・凝縮伝熱特性との比較を行い、熱交換器単体性能の向上のためには管内外の伝熱抵抗の低減よりも機械拡管時の溝変形を抑制する技術の開発が最も重要なことを明らかにしている。
- (2) 機械拡管によって発生する管表面の軸方向うねりと管内表面の微細構造変化を詳細に観察し、管内表面の微細構造は蒸発熱伝達を促進するが、うねりの発生によって管と密着するフィン数が減少し、伝熱性能の低下をきたすことを明らかにしている。
- (3) 機械拡管時の溝変形を最小限に抑える機能を有する犠牲拡管フィン付き螺旋溝付き管を開発し、数種類の試作管を用いて機械拡管前後の流動および蒸

発・凝縮伝熱特性を調べるとともに、この管を使用したクロスフィン型熱交換器の単体性能を調べている。そして、従来型螺旋溝付き管を使用した熱交換器の単体性能と比較し、犠牲拡管フィン付き螺旋溝付き管の優位性を明らかにしている。

以上要するに本論文は、クロスフィンチューブ型熱交換器の性能におよぼす内面螺旋溝の形状・寸法の影響および機械拡管による溝変形の影響を明らかにするとともに、機械拡管時の溝変形を最小限に抑える機能を有する犠牲拡管フィン付き螺旋溝付き管を開発してその有用性を明らかにしたものであり、熱工学、冷凍空調工学に寄与するところが大きい。よって、博士(工学)の学位論文に値するものと認められる。

氏名 (本籍) 太田 一 司 (宮崎県)
 学位記番号 総理工博乙 第336号
 学位授与の日附 平成16年 1月30日
 学位論文題目 Studies on Anode/Electrolyte Interfaces for Rechargeable Lithium Batteries
 (リチウム二次電池の負極/電解液界面に関する研究)

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 山 木 準 一
 (副 査) 〃 〃 辻 正 治
 〃 〃 森 章
 〃 〃 助教授 岡 田 重 人

論文内容の要旨

リチウムイオン二次電池は高電圧、軽量でエネルギー密度が大きいという特徴から、ノートパソコン、携帯電話のような民生用の機器の電源として、近年需要が大きく伸びている。また、民生用電源以外にも電気自動車や電力貯蔵システムといった大型の機器やシステムへの適用も期待されている。リチウムイオン電池は1996年以降市場が拡大しており、2002年度の電池生産量は6億個を超えている。電池需要の拡大に伴いユーザーからの高容量化、高性能化の要求はますます強くなってきており、正極材、負極材、電解液の材料開発が精力的に進められている。リチウム二次電池は初回充電時に電解液の分解により負極表面上に被膜 (Solid Electrolyte Interface: SEI) が形成される。この被膜は電池特性を支配する重要な役割を担っていると考えられている。しかしながら、これまで、個々の分析手法で分析しているのみで、表面分析、バルク分析、熱分析を駆使した総合的な解析例は極めて少な

い。本論文は、負極上に生成する被膜を最先端の分析装置を駆使して詳細に解析し、負極/電解液界面に関する研究成果を述べたものである。本論文は、第1章から第9章で構成される。

第1章“General Introduction”では、リチウム二次電池に関する背景、正極材、負極材、電解液の開発動向を概観し、リチウム金属負極、黒鉛負極表面に生成される被膜の研究例を紹介し、本研究の目的、意義および構成を述べた。

第2章ではイミド塩電解液におけるリチウム金属負極での充放電効率とリチウムの電析形態の関係について考察した。電解質にLiN(SO₂C₂F₅)₂(LiBETI)塩、溶媒に ethylenecarbonate (EC), propylenecarbonate (PC), γ -butyrolactone (GBL), dimethylcarbonate (DMC), dimethoxyethane(DME), tetrahydropyran (THP) を用いた場合、Ni基板上でのリチウムの充放電効率はEC+THP(1:1) > EC+DME(1:1) > EC+DMC(1:1) > EC+PC(1:1) > EC+GBL(1:1)の序列で向上した。高い充放電効率を得られたEC+THP溶媒系は粒子状の緻密な電析形態を示すのに対して、EC+PC, EC+GBLはデンドライト状の電析形態を示し、低い充放電効率となった。50サイクル後のNi基板上に析出している“dead lithium”の断面をSEMで観察したところ、EC+THP溶媒系は薄い被膜であり、効率が悪い溶媒系ほど厚い被膜が形成されることが確認された。デンドライト状の電析形態は溶解時に切れやすく表面積も高いため、電解液との副反応により充放電効率が低下し、厚い被膜が形成されるものと考察された。また、充放電効率は電析密度、温度に大きく依存しており、リチウムの電析形態と密接に関係していることがわかった。リチウム金属負極の電解液の開発にはデンドライトを抑制することが必須であり、イミド塩電解質(LiBETI)、環状エーテル系溶媒で構成される電解液は均一な粒子状のリチウム電析形態を示し、優れた電池特性が得られることが明らかになった。

第3章では、イミド塩(LiBETI, LiN(SO₂C₂F₅)₂(LiTFSI), LiPF₆塩電解質、環状エーテル溶媒系電解液においてNi基板上に形成される表面被膜を解析し、充放電効率との関係について検討した。NMRにより有機被膜の構造を解析したところ、これまで報告されているアルキル炭酸リチウム以外に polyethyleneoxide (PEO) やアルキル炭酸リチウムのオリゴマー成分が被膜成分として存在していることが明らかになった。被膜の最表面にポリマーの被膜成分及びLiFが存在しており、被膜内部にLi₂Oが存在していることがXPSの結果により確認された。イミド塩を電解質に選択した場合、上記被膜成分以外に最表面にLi₂

SO₃, Li₂S₂O₄, 内部にLi₂Sが存在することが確認された。それらのS系被膜がリチウムとの反応を抑制する保護膜となり、高い充放電効率得られると結論された。

第4章では vinylene carbonate (VC) を電解液添加剤に用いた場合のリチウム金属負極電池における効果について検討した。電極を加圧しながらNi基板上にリチウムを電析、溶解させることによりリチウムの充放電効率の測定を実施したところ、LiPF₆/EC+DMC(1:1)電解液にVCを添加することにより充放電効率が改良されることがわかった。さらに、充放電を高温(50℃)で行うことにより、優れたサイクル特性が得られることが見出された。一方、低温(0℃)における充放電効率はVCを添加することにより低下した。SEMによるリチウムの電析形態を観察結果から、低温ではデンドライトの析出形態を示し、厚い被膜が形成されていることが確認された。インピーダンス測定により、VCを添加すると高い被膜抵抗となることから、Liの伝導性が低下することにより、析出形態がデンドライト状になり、充放電効率が低下すると解釈した。

第5章では第4章の結果を踏まえて、室温、高温におけるVCの添加による充放電効率の改良効果の要因について明らかにすることを目的として、Ni基板上に析出した被膜を詳細に解析した。NMR, GPC, FT-IR, XPSの結果から、Poly(VC), VCのオリゴマー等が表面被膜として存在していることがわかった。これらの被膜が電析リチウムと電解液の反応を抑制するため、充放電効率が改良され良好なサイクル特性が得られると考察した。

第6章ではVC添加電解液における黒鉛負極表面の被膜をNMR, FT-IR, XPS, TOF-SIMSにより解析した。Poly(VC), VCのオリゴマー, VCの開環重合物, ポリアセチレン等のVCに由来するポリマー成分の被膜が確認された。それ以外に、二重結合を有したアルキル炭酸リチウム, カルボン酸リチウムが負極表面に存在していることがわかった。TPD-MSにより有機被膜の熱安定性を調べたところ、VCを電解液に添加することにより、熱安定性が向上されることが見出された。VC添加によってポリマーの被膜が形成されることにより安定な保護膜となり、優れた高温安定性が得られると結論された。

第7章では黒鉛負極でのPC系電解液における ethylene sulfite (ES) の添加効果について検討した。シンクロトン放射光を用いたXAFS及びXPSにより黒鉛負極の被膜を解析したところ、ROSO₂Li, Li₂SO₃, S-S, C-S等のS系被膜が形成されることが確認された。S系の被膜はPCの還元電位よりも貴な電位で生

成されており、S系の被膜がPCの還元分解を抑制するため、PC系電解液において安定に電池として作動するものと考察した。

第8章では難燃性電解液における環状リン酸エステル ethylene ethyl phosphate (EEP) の添加剤としての効果について検討した。りん酸エステル trimethyl phosphate (TMP) 系電解液は優れた難燃性を示すが、還元安定性に問題がある。EEPは難燃性を有するとともにTMP系電解液にEEPを添加することにより電解液の還元分解を抑制する機能があることが見出された。黒鉛負極の表面に形成されるりん酸系の被膜が保護膜としての機能を果たすことにより、安定な充放電特性が得られたと結論された。

第9章“General Conclusion”では、第8章までの結果をまとめるとともに、リチウム二次電池の電解液および負極の材料開発には電極/電解液の詳細な解析が必要であることを示し、総括とした。

論文調査の要旨

リチウムイオン二次電池は高電圧、軽量でエネルギー密度が高いという特徴から、ノートパソコン、携帯電話のような民生用の機器の電源として、近年需要が大きく伸びている。電池需要の拡大に伴いユーザーからの高容量化、高性能化の要求はますます強くなってきており、正極材、負極材、電解液の材料開発が精力的に進められている。リチウム二次電池は初回充電時に電解液の分解により負極表面上に被膜 (Solid Electrolyte Interface : SEI) が形成される。この被膜は電池特性を支配する重要な役割を担っていると考えられている。しかしながら、これまで、個々の分析手法で分析しているのみで、表面分析、バルク分析、熱分析を駆使した総合的な解析例は極めて少ない。

本論文は、負極上に生成する被膜を各種分析装置を駆使して詳細に解析し、負極/電解液界面に関して研究したもので、以下の成果を得ている。

- (1) $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{C}_2\text{F}_5)_2$ (LiBETI) 塩と種々の溶媒を用いた電解液において、リチウムの充放電効率は炭酸エチレン (EC) / テトラヒドロピラン (THP) (1 : 1) が最も大きいことを見出している。サイクル後のNi基板上に析出している“死んだリチウム”をSEMを用いて断面観察を実施しており、EC/THP溶媒系では薄い被膜が生成し、効率が悪い溶媒ほど厚い被膜が形成されることを明らかにしている。
- (2) この原因を解明するためにNMRスペクトル解析によりSEIの構造を明らかにし、従来知られていた被膜成分以外に最表面に Li_2SO_3 、 $\text{Li}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 、内部に Li_2S が存在することを確認しており、それらの2系被膜により高い充放電効率が得られると指摘し

ている。

- (3) リチウム金属負極電池においてビニレンカーボネイト (VC) を添加して充放電を高温 (50℃) で行うと、優れたリチウムの充放電効率が得られることを明らかにしている。インピーダンス測定により、VCを添加すると高い被膜抵抗となることから、リチウムの伝導性が低下することにより、リチウムの充放電効率が低下すると指摘している。
- (4) この原因をNMR, GPC, FT-IR, XPSを用いて解析し、Poly (VC)、VCのオリゴマー等がVC由来の表面被膜として存在しているためであることを見出している。
- (5) VC添加電解液における黒鉛負極表面の被膜をNMR, FT-IR, XPS, TOF-SIMSにより調べている。VC由来の被膜として、Poly (VC)、VCのオリゴマー、VCの開環重合体、ポリアセチレン等のポリマー成分が形成されることを明らかにしている。また、二重結合を有したアルキル炭酸リチウム、カルボン酸リチウムについても負極表面に存在していることを確認している。
- (6) 黒鉛負極での炭酸プロピレン (PC) 系電解液における ethylene sulfite の添加効果について調べている。シンクロトン放射光を用いたXAFS及びXPSにより黒鉛負極の被膜を解析し、 ROSO_2Li 、 Li_2SO_3 、S-S、C-S等のS系被膜が形成されていることを明らかにしている。S系の被膜がPCの還元分解を抑制するため、PC系電解液において安定に電池として作動するものと考察している。
- (7) 難燃性のリン酸トリメチル系電解液に ethyl ethylene phosphate を添加することにより、還元分解を抑制する機能があることを見出している。黒鉛負極の表面に形成されるリン酸系の被膜が保護膜としての機能を果たしていることを指摘している。

以上、要するに本論文はリチウム二次電池における負極表面上の被膜成分を明らかにするとともに、被膜の役割を解明することによりリチウム二次電池の電解液材料開発の重要な指針を与えたものであり、価値ある業績と認める。

氏名 (本籍) 白濱 升 章 (鹿児島県)
 学位記番号 総理工博乙 第337号
 学位授与の日附 平成16年1月30日
 学位論文題目 窒素酸化物 (NO, NO₂) の活性炭素繊維 (ACF) 上での酸化捕捉・還元無害化
 論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 持田 勲
 (副査) 〃 〃 辻 正 治
 〃 〃 〃 山 添 昇
 〃 〃 助教授 光 来 要 三

論文内容の要旨

本研究は、大気汚染物質である窒素酸化物の除去を目的として、ACF上におけるNOおよびNO₂の挙動に関する基礎研究、および尿素/ACF上における尿素とNOおよびNO₂との反応に関する基礎研究を行った。NO_xを室温付近で酸化捕捉して、固定化するか、あるいは、還元し、無害なN₂へ変換することを最終目標とした。

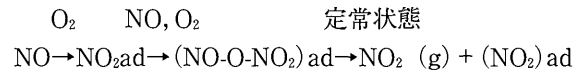
ACF上におけるNOの酸化反応では、まず、NOの吸着が起こり、表面に中間体が生成し、これが触媒となって定常酸化が続く。ある程度以上酸素濃度を高めると、初期過程で、複雑な過渡現象を示すが、最終定常酸化反応には影響しない。

NO₂はACF上で不均化反応を起こし、NO_{3ad}とNOを生ずる。この不均化反応は容易に進み、高濃度の酸素を存在させても、NOの発生を抑制することは困難である。

尿素をACFに添着させた尿素/ACFは、NO_xをN₂へ還元する能力があることを見出した。NO₂は、O₂の存在とは無関係に、尿素/ACFにより、容易にN₂へ還元される。NOの尿素/ACFによる還元では、O₂の存在が必要で、NOのNO₂への酸化が鍵となる。尿素/ACF床の前部で、NOをNO₂へ変換することにより効率向上が可能である。この尿素/ACFによるNO_x還元除去法は、装置および操作が簡単であり、常温で進み、排煙のみならず大気中のNO_xの無害化に、有効な手段を提供している。

第1章では、本研究の背景について述べると共に、本研究の目的を述べた。

第2章では、大きな表面積を有するピッチ系ACF上で、O₂の存在下、NOの酸化を調べた。NOは、飽和に至るまで吸着によって除去され、その後、急激に定常酸化に到達し、気相出口濃度としてNO₂が観察された。O₂およびNOの濃度を高めることによって、NOの飽和吸着量、定常酸化率は増加した。これらの様子は、Freundlichの式によく適合した。NOについての反応次数は、ACF表面に多分子中間体の生成を示唆する。定常状態にあるACF表面上での吸着種はNO₂であることを示した。NOのNO₂への酸化が定常酸化状態に到達する直前に観察された、出口極大NO濃度ピークは、NOが多分子中間体生成へ関与していることを示している。これらの結果から、次のような反応機構を提案できる。

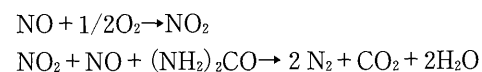


第3章では、供給NOおよびO₂濃度を高くして、NOの酸化を観察した。極大NO濃度ピークが、定常NO酸化状態に到達するまでに、2回出現した。これは、酸化反応開始と同時に起こるNOの吸着でACF表面に形成される多分子中間体が、早期に形成され、NO酸化を促進し、NO₂を急速に発生させる。このときのNOの急激な減少が、最初のNO極大ピークに対応する。ここで発生したNO₂は、当然のことながら、ACF表面の未吸着サイトへ吸着される。NO₂の一部は、不均化によりNO_{3ad}の形で吸着されるが、他の一部はNOガスとなって放出される。この放出されたNOガスが、第2のNO極大ピークとなって現れるのであろう。ACF面の吸着サイトがすべて飽和された後は、NOのNO₂への定常酸化が続くことになる。

第4章では、NO₂のACF上における挙動を観察した。NO₂濃度: 250-1000ppmを窒素雰囲気中、無酸素下で、NO₂をACF上に通すと、NO₂の吸着と同時に、ほぼ同量のNOガスが発生する。吸着したNO₂は、1360と1384cm⁻¹に二つの主なバンドを示し、1384cm⁻¹はNO₃の非対称伸縮振動と同定し、NO₃型の存在を確認した。NO₂はACF上で不均化反応によって、NO_{3ad}吸着体とNOガスを生ずる。この不均化反応は、O₂濃度を10%に高めても、優先して起こり、NO(g)の発生を完全に抑制することは困難である。

第5章では、50-500ppm NO₂は、ピッチ系ACFに担持した尿素によって室温で窒素に還元されることを見出した。その還元は尿素が完全に消費されるまで続いた。石英ウールに担持された尿素はNO₂と反応しないことから、このNO₂の還元反応には、ACFの触媒作用が強く関与している。O₂も湿度もNO₂の還元反応に殆ど影響を与えない。湿度は、NO₂の還元除去の期間を延長するが、NO₂から生成したNO_{3ad}(不均化反応で生成)がHNO₃へ変化するためであろう。

第6章では、ACFに担持した尿素によるNOの還元を観察した。還元は、次のように進行するものと思われる。



NOの酸化が律速段階であるので、NOの酸化触媒能の強いACFが期待される。従って、尿素の添着量が多過ぎると、ACFの表面被覆の割合が大きくなりACF面でのNO酸化反応が阻害されるので、NO₂の生成率が低くなり、NOの還元率は低下する。しかし高温焼成したACFは、尿素の担持率もよく、NOの還元能も大きい。

第7章では本研究の成果を総括した。

論文調査の要旨

窒素酸化物 (NO_x) は、依然大気汚染物質として汚染地域の住民に健康障害をもたらしている。排煙中の窒素酸化物は、350–450℃でアンモニアまたは炭化水素および一酸化炭素を還元剤として、チタニア担持酸化バナジウムあるいはアルミナ担持白金族触媒上で還元無害化されている。この方法は、各々固定発生源およびガソリンエンジンからの排煙に広く適用されているが、そこでの脱硝率は50–80%であるため、大都市周辺では大気中の窒素酸化物濃度に関する環境基準が達成されていない。このため、大気中に放出された窒素酸化物の除去技術の開発が期待されている。また、医療における窒素酸化物の利用が拡大しており、医療従事者の健康のため、使用するその場でのNO₂無害化も期待されている。

本論文は、ピッチ系活性炭素繊維が大気中のNO/NO₂を室温で酸化あるいは不均化を経て、NO₃として吸着捕捉あるいはHNO₃として固定化し、また同繊維に尿素を担持すれば窒素へ還元できることを見出し、大気汚染の直接防止技術の基盤を提案している。主な成果は以下の通りである。

- (1) 焼成したピッチ系活性炭素繊維は、NOを室温で、酸化吸着し、飽和吸着後NO₂を排出する定常的酸化反応を促進することを見出している。この反応は、NO、O₂濃度の増加によって加速され、Freundlich式で記述できることから、NO₂二量体型中間体を提案している。ここで生成するNO₂は、アルカリ水溶液によって硝酸塩として固定できる。
- (2) NOおよびO₂濃度あるいは活性炭繊維量を増加すると、定常状態が達成される以前にNOの極大が2回出現することを見出した。第1ピークがNOに対する活性炭素繊維の酸化吸着除去能の飽和から、酸化反応の寄与の急速な増加へ変換する過程で出現し、第2ピークは飽和吸着したNO₂の不均化のためにNOの生成による出現と説明している。
- (3) N₂あるいは空気中の50–500ppmのNO₂を活性炭素繊維上を流通させると、吸着NO₃とNOへ不均化することを見出した。空気中ではNO₃の酸化が促進され、NOの生成はわずかに抑制できる。乾燥ガス中ではNO₃の飽和吸着により反応が停止するが、高湿度大気中では、HNO₃が溶出し、不均化反応が継続する。つまり、活性炭素繊維上で2分子のNO₂は1分子のNOを生成し、なお1分子をHNO₃として、連続捕捉できることを見出している。
- (4) 50–500ppmのNO₂を尿素を担持した活性炭素繊維に流通させると、室温でN₂に還元できることを

見出した。担持された尿素1分子は2分子のNO₂を還元できることから、NO₂の室温還元無害化技術の基盤として価値がある。

- (5) 大気中50–500ppmのNOを尿素を担持した活性炭素繊維に流通すると、かなりの転換率でN₂へ還元できることを見出し、新規な室温NO無害化法を提案している。この反応に対して、NOがNO₂へ酸化され、尿素により還元される機構を提出している。この機構に基づき、NOをNO₂へ酸化する活性炭素繊維床を尿素担持活性炭素繊維床の前に設置することにより、NO還元除去を促進できることも見出している。

以上要するに、本論文はピッチ系活性炭素繊維上におけるNOおよびNO₂の酸化、不均化反応および担持した尿素による還元反応を調べ、大気汚染排出物を捕捉あるいは窒素へ無害化できる方法を見出したもので、炭素科学および触媒化学、大気汚染防止上寄与するところが大きい。よって博士(工学)の学位に値すると認める。

氏名(本籍) 船津 徹也(福岡県)
 学位記番号 総理工博乙 第338号
 学位授与の日附 平成16年1月30日
 学位論文題目 コンバインドサイクル発電プラントのシステム最適化と制御に関する研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 益田 光治
 (副査) “ “ 高崎 講二
 “ “ “ 福田 研二

論文内容の要旨

近年、火力発電では従来のボイラーと蒸気タービンによる発電形態に代わり、ガスタービンおよび排熱回収ボイラーと蒸気タービンを組み合わせた発電サイクルが主流となっている。このサイクルはコンバインドサイクルと呼ばれ、従来型の発電形態に比べて、ガスタービンによる高温部分でのエネルギー回収が可能であることから熱効率が高くなる。

コンバインドサイクル発電プラントでは熱効率を上げるため、ガスタービン入口温度の高温化が図られてきた。約15年前に1100℃であったガスタービン入口温度は、数年前に1300℃になり、現在では1500℃へ移行しようとしている。いっぽう、蒸気タービンサイクルは、ガスタービン入口温度の高温化とともに増加するガスタービン排エネルギーを効率よく吸収するため、

蒸気の高温化、高圧化と並行してサイクルの改良が図られてきた。1100℃のガスタービンでは、高圧蒸気と低圧蒸気を利用する2圧式と呼ばれる蒸気タービンサイクルであったが、1300℃級のガスタービンでは高圧蒸気、中圧蒸気と低圧蒸気を利用し、さらに一度蒸気タービンで膨張した高圧蒸気を再熱する3圧式再熱サイクルに移行した。1500℃のガスタービンは更に複雑な蒸気サイクルとなっており、従来のパラメーター解析の繰り返しによる経験的な排熱回収システム設計法や、従来型火力発電の運転・制御方法の延長では対応できなくなりつつある。

本研究では、コンバインドサイクル発電プラントに対し、数値計画法を導入した演繹的なシステム設計法を提案するとともに、これを用いて熱効率と設備コストとを考慮した経済性の高い排熱回収システムを設計する。また、ガスタービン排ガス以外の熱源を有する複合システムに対して、最適なシステム設計法を提案する。この手法を次期コンバインドサイクル発電プラントで用いられる蒸気冷却ガスタービンシステムの設計に適用し、ガスタービン翼からの冷却熱を効果的に活用できる熱効率の高い排熱回収システムを示す。さらに、コンバインドサイクル発電プラントの動特性を高精度で予測できるモデルを開発するとともに、これを用いた新しいコンバインドサイクル発電プラントの運転・制御方式を提案する。とくに起動過程に熱応力予測モデルを用いた制御法を導入し、蒸気タービンローターに発生する熱応力を予測しながらガスタービンの最適負荷上昇率を逐次計算する起動方法を提案する。また、予測熱応力が制限値以内に収まるようにガスタービンの負荷上昇率を設定することにより、熱応力制限値を維持しつつ短時間で起動できる最適なコンバインドサイクル発電プラント起動方法を示す。以上の研究を総合し、効率、経済性、起動性を備えた最適なコンバインドサイクル発電プラントを設計する指針を与える。

本論文はコンバインドサイクル発電プラントのシステム最適化と制御に関する研究を取りまとめたもので、7章から構成される。

第1章では、本研究の背景について述べた。

第2章では、本研究で解析の対象とした1300℃級ガスタービンと3圧式再熱サイクルによる排熱回収システムを備えたコンバインドサイクル発電プラントの構成を示した。

第3章では、コンバインドサイクル発電プラントの排熱回収システムについて、エネルギーコストと設備コストを合わせた全コストを最小にすることを目的とする、数値計画法を用いた演繹的なシステム設計法を提案した。また、これを用い、経済的な排熱回収シ

ステムの設計指針を示した。

第4章では、ガスタービン排ガス以外からのエネルギー回収をとまなうコンバインドサイクル発電プラントの排熱回収システムにおいて、最も効率良くエネルギー回収が行える最適なシステム設計の手法を示した。また、本手法を次期コンバインドサイクル発電プラントであるガスタービン翼を蒸気冷却するシステムに適用し、ガスタービン翼からの冷却熱を効果的に活用できる熱効率の高い排熱回収システムの条件を示した。

第5章では、コンバインドサイクル発電プラント排熱回収システムの動特性モデルを開発し、このモデルによる解析結果をプラント運転データと比較してその有効性を検証した。とくに自然循環形ドラム蒸発器については、低循環流量域での熱伝達がプラント全体の起動特性に大きな影響を与えることを示した。この動特性モデルにより、コンバインドサイクル発電プラント全体の動特性を精度良く把握することが可能になった。

第6章では、コンバインドサイクル発電プラントの起動制御に熱応力予測モデルに基づく制御法を導入し、蒸気タービンローターに発生する熱応力を予測しながらガスタービンの最適負荷上昇率の設定値を逐次計算する起動方法を提案した。すなわち、発生する熱応力を予測し、その熱応力が制限値以内に収まるようにガスタービンの負荷上昇率を設定することで、熱応力制限値を維持しつつ短時間で起動できる最適なコンバインドサイクル発電プラント起動方法を示した。

最後に第7章では、本研究で得られた結果をまとめた。

論文調査の要旨

近年、火力発電では従来のボイラーと蒸気タービンによる発電形態に代わり、ガスタービンおよび排熱回収ボイラーと蒸気タービンとを組み合わせた発電サイクルが主流になりつつある。このシステムは、ガスタービンサイクルがブレイトンサイクル、蒸気タービンサイクルがランキンサイクルであることから、コンバインドサイクルと呼ばれており、プラントの熱効率は従来型の火力発電が42%程度であるのに対し、最新鋭のコンバインドサイクル発電では50%に達している。いっぽう、従来型の火力発電における年間の燃料コストは数百億円で、熱効率を1%向上させれば数億円の燃料コスト節約につながるため、これまでも高効率化のための設備投資が進められてきた。しかし、高効率化を目指して導入されたコンバインドサイクルはシステムを複雑化し、初期投資額の増大を招いている。このため、プラントで消費される燃料コストと設備コストの合計値を最小にする経済的なシステムの設計方

法の確立が急務となった。また、コンバインドサイクル発電プラントは起動性に優れていることから、夜間停止や週末停止運転に用いられることが多い。したがって、起動時間は運用計画を決めるための重要な要素であり、起動時間の短縮はコンバインドサイクル発電プラントの大きな課題の一つである。いっぽう、起動時には機器の温度が急激に変化して熱応力が発生するが、過大な熱応力は機器の寿命を短くするため、この熱応力を既定値以内に抑えながら起動時間を短縮する技術が求められている。

本論文は、コンバインドサイクル発電プラントに対し、数理計画法を用いたシステム設計法、発電プラントの動特性を高精度で予測できるシミュレーションモデルおよび蒸気タービンローターに発生する熱応力を考慮したプラント起動方式について研究した結果をまとめたもので、以下の点を明らかにしている。

- (1) 3圧式再熱サイクルを有するガスタービンコンバインドサイクル発電プラントの排熱回収システムに対し、ガスタービンの排ガス条件から蒸気タービン出力を最大にするための最適な排熱回収システムを、数理計画法を用いて設計する手法を開発している。この手法を用い、熱交換器内部における高温流体と低温流体の温度差をパラメータとして燃料コストと設備コストの変動を解析し、燃料コストと設備コストの和であるトータルコストを最小にするためのシステムが本手法で決定できることを示している。
- (2) ガスタービン排熱以外の熱源を有する複合システムに対し、数理計画法と非線形計画法を用い、最大発電出力を得るためのシステム設計法を提案している。この手法を蒸気冷却コンバインドサイクル発電プラントのシステム設計に適用し、同サイクルのガスタービン条件に最も適した排熱回収システムを検討している。その結果、熱回収の条件が異なると排熱回収システム内における再熱器と冷却器の配置が大きく異なることを見出している。
- (3) 3圧式再熱サイクルを有するコンバインドサイクル発電プラントにおける排熱回収システムの動特性モデルを開発している。このモデルを用いてプラント起動過程を推定、その結果を実機の運転データと比較した結果、冷起動、暖起動の双方において、モデルによる起動時間の計算値は4%以内で実機のデータと一致することを示している。
- (4) プラント起動過程には、蒸気タービンで発生する熱応力が制限値以下で、かつ起動時間が最短であることが要求される。本論文において著者は、蒸気タービンローターに発生する熱応力を予測しつつ、ガスタービンの負荷上昇率を変化させる予測制御アルゴリズムを開発している。この計算結果に基づき、実

機の起動試験を行い、従来190分であった起動時間を124分にまで短縮することに成功している。

以上要するに、本論文はコンバインドサイクル発電プラントを対象とし、数理計画法を用いたシステム設計法を提案するとともに、プラント性能改善のための動特性解析モデルを考案、また予測制御アルゴリズムを用いて蒸気タービンローターに発生する熱応力を規定値以内に保ちながらガスタービンの起動時間を短縮する技術を開発したもので、エネルギー工学上寄与するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位論文に値すると認める。

氏名（本籍） 上下利男（福岡県）
 学位記番号 総理工博乙 第339号
 学位授与の日附 平成16年2月23日
 学位論文題目 高効率両面受光太陽電池及びその応用技術に関する研究

論文調査委員

（主査）九州大学 教授 中島 寛
 （副査）〃 〃 笹田 一郎
 〃 〃 宮尾 正信

論文内容の要旨

両面受光太陽電池は両面からの受光で発電する太陽電池で、高い総合変換効率を期待できることから低コスト化太陽電池として注目され、1980年代後半からその研究・開発が行われてきた。しかし製造プロセスが複雑であることや良質のシリコン基板を必要とすること等から特殊用途に限定され、量産プロセスでの製品化は実現していない。

本論文は、①太陽電池用CZシリコン基板を使用したn+pp+構造の両面受光セルをリングゲッターリングと低温ボロゲッターリングとを組合せた新しいゲッターリング手法を適用することによって、量産プロセスでの高効率化を達成したこと、②両面受光太陽電池の基本応用技術として、年間発電量が設置方位によらず片面受光モジュール南向き最適傾斜設置と同等になること等の特徴を持つ両面受光垂直設置方式を提案し、各種シミュレーション及び実証試験によりその有効性を実証したこと、及び③モジュールコストの低減を目的に両面受光セルと集光機能とを組合せた平板集光形太陽電池モジュールを開発し、その設計手法を確立したこと、についてその研究成果をまとめている。

第一章は序論で、本研究の背景、目的と展開、論文の概要を述べている。

第二章は、n+pp+形の両面受光セルに新しいゲッ

タリング手法を適用して、少数キャリアの高ライフタイム化及びセルの高効率化を図ったことについて述べている。

n+pp+形両面受光セルは裏面側のp+層はボロン拡散により形成し、裏面電極はおもて面電極と同様なグリッド電極を採用している。このセルでは、裏面受光によって発生するキャリアはおもて面から0.35 μm の深さに形成されたn+p接合まで有効に到達する必要があるため大きな拡散長、即ち高ライフタイムが要求される。基板はセル製造プロセスでFe汚染されるため、少数キャリアのライフタイムを向上させるにはFeの有効なゲッタリングが不可欠である。ゲッタリング手法として、①リングゲッタリングと、②熱拡散処理後に低温アニールを適用することによって素子活性領域に存在するFeを裏面p+層に捕獲する低温ボロンゲッタリングの二つを組合せることにより、基板初期のライフタイムまで回復できることを実験で明らかにしている。また、最近報告された「シリコン中におけるFe挙動パラメータ」に適切な境界条件を設定した物理モデル式を作成してシミュレーションを実施し、実験結果とかなり良い一致を示していることを確認している。更に、セル化の最終熱工程である電極形成において、銀ペースト及び焼成温度プロファイルを最適化することでライフタイム低下を無視できるセル性能を達成している。

第三章は、両面受光太陽電池の基本応用技術として、従来の南向き最適傾斜設置方式に対して、太陽光発電の応用分野の飛躍的拡大が期待できる両面受光垂直設置方式について述べている。

通常、太陽電池は最大の年間発電量を得るため南向き傾斜設置としている。両面受光モジュールを同様な設置とした場合、反射・散乱光による裏面での発電が加わり年間発電量は10%程度大きくなる。両面受光垂直設置方式は従来の固定概念から離れて両面受光太陽電池を垂直設置するものである。この方式では如何なる方位角に設置しても年間発電量はほぼ一定で、かつ片面受光南向き最適傾斜設置と同等となる。各種シミュレーション及び実証試験を行いその有効性を確認している。この研究から両面受光垂直設置方式はビル屋上フェンス一体形システムや高速道・鉄道の遮音壁一体形システムなどに効果的に適用でき、太陽光発電設置ポテンシャルを飛躍的に拡大できることを明らかにしている。

第四章は、太陽電池モジュールのコストの大半を占めるセルの使用量を半減し、モジュールに集光機能を持たせた平板集光モジュールの研究結果について述べている。

研究した平板集光モジュールは、2枚の平板ガラス

の中に両面受光セル・ストリングを間隔を空けて配置し、裏面ガラス外側にV溝構造を持つ反射シートを貼付けた構造である。このモジュールは従来形モジュール用製造設備を利用して低コストで製作できる特徴がある。平板集光モジュールを設計・製作し、シミュレーション及び実験によりその性能を確認しており、東京地点において年間平均ベースで90%の集光効率を示し、非集光モジュールの170%の発電性能を達成している。

第5章は、以上の成果をまとめたもので、本研究の総括と残された課題及び今後の展開について述べている。

論文調査の要旨

両面受光太陽電池は両面からの受光で発電する太陽電池で、高い総合変換効率が期待できることから高効率太陽電池として注目され、その研究・開発が行われてきた。しかし、製造プロセスが複雑であることや良質のシリコン基板を必要とすること等から特殊用途に限定され、量産プロセスでの製品化は実現していなかった。

本論文は、低コスト・高効率の両面受光太陽電池セル製造およびその産業応用を目的として、セル製造法ならびに太陽光集光方式を検討して発電効率を大幅に向上できる量産プロセスでの製造技術、および両面受光太陽電池の利点が生かせる垂直設置方式に関して研究したもので、以下の成果を得ている。

- (1) n⁺pp⁺形両面受光太陽電池セル製造には、素子活性領域(p領域)が鉄汚染され、少数キャリアライフタイムが1桁以上低下する問題を抱えていた。鉄を活性領域から除去することを目的として、リングゲッタリングと低温ボロンゲッタリングとを組合せた方法により鉄をn⁺とp⁺層に集め、ライフタイムを基板初期値まで回復できることを実験的に示している。
- (2) 「シリコン中の鉄挙動パラメータ」に適切な境界条件を設定した物理モデル式を用いてシミュレーションを実施し、計算結果が実験結果と良い一致を示すことを見出している。
- (3) セル化の最終熱工程である電極形成において、銀ペーストおよび焼成温度プロファイルを最適化することで、ライフタイムの低下が無視できることを見出し、量産プロセスでの高効率化を達成している。
- (4) 両面受光太陽電池の利点を生かすため、垂直設置方式を提案している。この方式では、如何なる方位角に設置しても、年間発電量はほぼ一定でかつ片面受光南向き最適傾斜設置と同等となることを、各種シミュレーションおよび実証試験によりその有効性を確認している。

- (5) 両面受光垂直設置方式はビル屋上フェンス一体形システムや高速道・鉄道の遮音壁一体形システム等に効果的に適用でき、太陽光発電設置ポテンシャルを飛躍的に拡大できることを明らかにしている。
- (6) 太陽電池セルの高効率化を目的として、平板集光モジュール (Flat-Plate Static Concentrator: FPSC) を設計・製作し、シミュレーションおよび実験によりその性能向上を確認している。具体的に

は、幾何学的集光倍率2.0のFPSCで、年間平均で1.8倍の集光効率向上と非集光モジュールに較べて1.7倍の発電性能向上を達成している。

以上、要するに本論文は、高効率両面受光太陽電池セルの製造を量産プロセスで実現すると共に、その産業応用として垂直設置方式を提案し、その有効性を実証することにより太陽電池の新たな産業応用の可能性を示したものであり、価値ある業績と認める。

