

# 粉体・ガス同時インジェクション装置の小型化と性能の向上化

名古屋大学 工学研究科材料・技術部  
高井章治 , 栗本和也

## はじめに

近年，材料の高純度化の実験において，反応条件の制約から，熔融金属中にフラックス等の粉体を反応系ガスと同時にインジェクションする必要性が出てきている。当該研究室では，シリコン中の脱ボロンの研究に伴いインジェクション装置を購入した。当初は，粉体の特性にもよるが，装置から思うように送送することができないような状況であった。そこで，先ず本体の改良そして配管やガス導入経路の工夫・改善を重ね，研究の結果としては，一応良好なデータを得るまでに至った。しかし，購入したインジェクション装置には，まだ余剰な部分，小型化の可能性，粉体とガスの相互の影響など，考慮できる点が残されている。本報告では，これまでの成果を踏まえ，諸処の因子を測定しながら装置の小型化および性能の向上化をめざし開発を行った結果を報告する。

## 1 フラックス処理・ガス同時インジェクションの原理と現装置の現状

近年，一般に高純度（SOG-Si; Solar Grade Silicon: 6 ~ 7N）な金属シリコンを量産する製造するプロセスとしては，コスト，生産性の面から冶金的な精製技術の適用が主流となっている。中でもリンやボロンの濃度は半導体の特性を決定づけるものであり，正確な濃度制御が必要である。特に脱ボロンでは，SOG-Si レベル濃度（0.1 ~ 0.3mass ppm）を得るために，プラズマ溶解法を含む除去行程がバッチで行われ，消費エネルギーコストや処理時間が掛かりすぎて，実操業化には至っていない。この脱 B の研究は，**図 1** に示す行程に粉体・ガス同時インジェクション法を前処理行程として位置づけ，時間の短縮と低コストを図ろうとするものである。

除去の原理は，酸化物混合フラックス中に熔融金属中の不純物を酸化物の形で吸収しようとするものである。模式的に**図 2** に示した。当該研究の反応に当てはめると，まず酸素ガスの吹き込みで，熔融シリコン中のボロンを  $B_2O_3$  の酸化物とする。同時に吹き込んだフラックス（ $CaO-CaF_2$ ）に  $BO_3^{3-}$  のイオンの形で吸収させるというものである。**図 3** には，インジェクション法を示す。これに現行のインジェクション装置が使われ，フラックス・ガ

分析・物質技術系

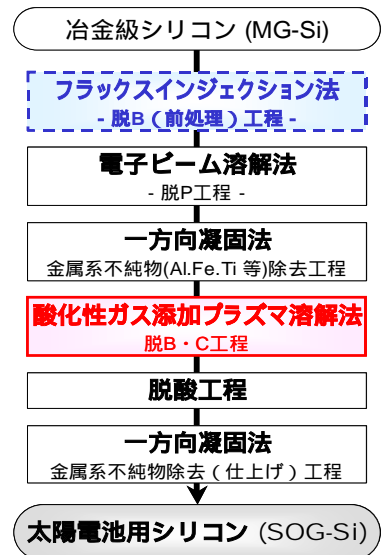


図 1 .脱 B 予備処理工程としてのフラックスインジェクション法の導入

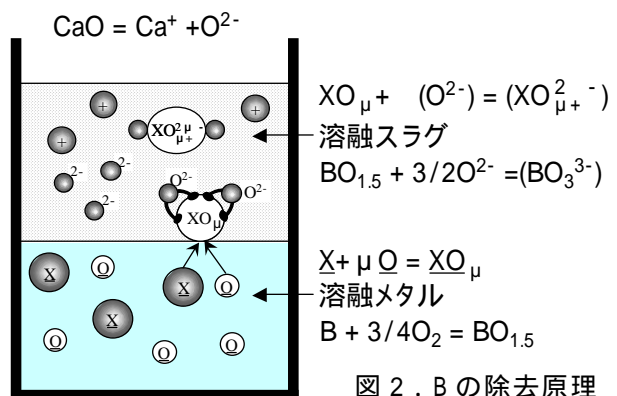


図 2 . B の除去原理

ス同時インジェクション法が不純物除去の前処理行程として可能であることが一応の成果を持って示された。フラックスの  $\text{CaF}_2$  は、粘性を下げ、液-液-気体反応を維持するためのものである。

現装置の現状としては、粉体ふるい落とし量に対して装置が大きすぎる。さらに装置位置が、実験炉に対し移動しにくいいため、インジェクション系配管が直線的にできない。導入ガス量以外、各因子に対して連続的可変ができないので、実験結果を踏まえながら各因子を決定している。振動子の調整が大まかすぎるため振動のコントロールが難しく、コントロールの幅も狭い。など考慮すべき点が残されている。

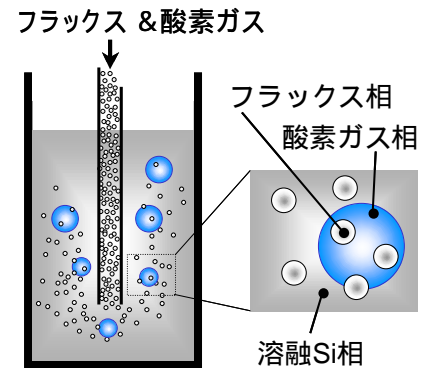


図3. フラックス・ガス同時インジェクション法

## 2 振動制御に関する検討

### 2.1 振動子の固定位置と回転数電圧変化

振動源には、市販の小型モーター（入力 DC1.2~3.5V, 6500rpm~11800rpm）を使用しモーターに付ける振動子を3種類（写真1）試作しテストした。

その結果を表1に示す。

固定位置は、中心からの距離をとった。電圧は、DC1.5~3.0Vまで3段階測定した。

表.1 固定位置と電圧を変化させたときの回転数（rpm）

固定位置	電圧変化		
	1.5V	2.00V	3.0V
0mm	6,500	7,800	11,800
2.5mm	2,800	3,320	4,950
3.5mm	2,150	2,580	3,800
4.5mm	1,980	2,280	3,550

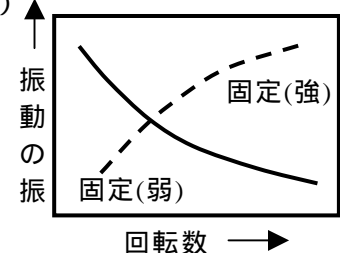


図4. 振動部固定と振動

### 2.2 振動源の固定具合

上記測定では、振動源（モーター）の固定を一定とした。

図4に示すように固定が緩いと回転数が下がり振動の振幅が大きくなる。固定を強くすると回転数が上がり振幅は小さくなる。今回の振動部の固定は、適度な振動と回転が得られ、長時間振動部の固定が保てる程度とした。



写真1. 振動子

## 3 実際の改良と結果

### 3.1 試験用粉体の粒度分布測定

実験用のフラックスは、吸湿性があるため、篩いによって  $20 \sim 100 \mu\text{m}$  と  $100 \sim 200 \mu\text{m}$  の粒径のものが篩い分けられて使われた。今回は、インジェクションの量が同じならば、脱ボロン実験の結果に顕著な影響は見られなかった。試験用には粉体としてアルミナ  $10 \sim 20 \mu\text{m}$  のものを使用した。堀場製作所 L920 粒度分布測定装置にて粒度分布の測定を行った。図5に示す。

粒径の大小，均一化，吸湿性などは，一定時間に定量的に再現性良くふるい落とすことに関して影響を及ぼ

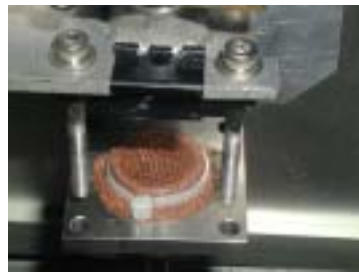


写真 2-a. 現装置のふるい落とし口

す。粒径は，反応性や量の制御から小さい方がよいが，インジェクションしたときの抵抗や吸湿性を考慮すると， $20\mu\text{m}$ 以下では，シリコン浴にインジェクションされる前に管壁などに付着したり，目詰まりを起こすなど，負の影響が確認されたため，実際の処理実験には  $20\sim 100\mu\text{m}$  のものが使われた。

### 3.2 ふるい落とし口の改良

粉体のふるい落とし量を現装置では，ふるい落とし口を分解し，1296メッシュの銅製の金網2枚を組み合わせて隙間角度を調整し，再び組み立ててという行程を繰り返して決定したのに対して，本装置は，スライド式の粉体ストッパー兼ガス導入管の上下動によって簡単に可変し調整することができるようになった。写真 2-a-b に示す。

### 3.3 装置の小型化

現行装置と改良型装置を比較のために写真 3 に示す。

振動源には当初携帯用のバイブレーターを使ったが，能力が小さすぎ，十分な振動は得られなかった。2の結果を基に，アルミナ( $10\sim 20\mu\text{m}$ )の粉体を水中にインジェクションする試験では，電圧 DC3.0V，振動子は固定位置が中心より 2.5mm のもの，回転数約 5,000rpm の条件で  $5\sim 35\text{g}/\text{min}$  のインジェクションの制御ができた。現行装置も試験段階では，同様のテストを行っているが，本装置は，現行装置での実験条件は簡単にクリアすることができた。



写真 4. 安定化電源

### 3.4 振動の安定化

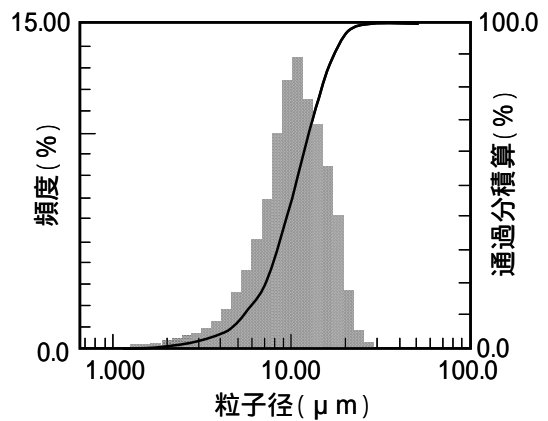


図 5. 試験粉体の粒度分布測定

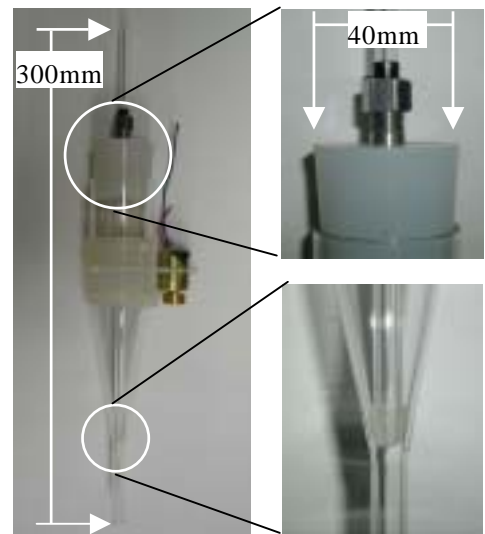


写真 2-b. 本装置の粉体ストッパー (下) 兼ガス導入管 (上)

写真 3. 現装置との大きさの比較

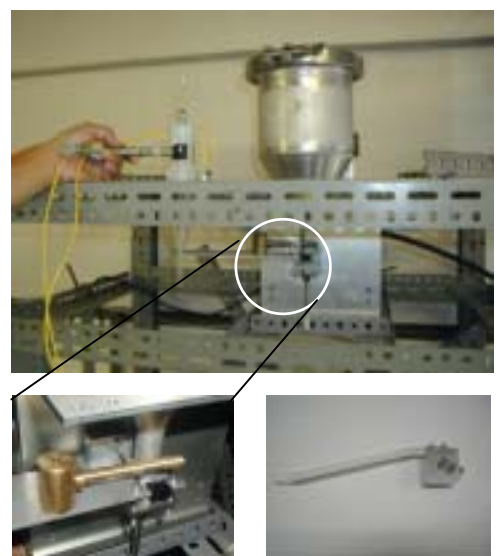


写真 5. 現装置との目詰まり防止装置の比較

振動の安定化対策の一つとしてモーターの電力供給に対して、出力DC1.2~3.5Vの可変安定化電源を試作した。(写真4)これによっても振動の制御の幅を広げることができた。

### 3.5 導入ガス流量と粉体試料のふるい落とし量への影響

導入ガスは、当該研究同様にO<sub>2</sub>ガスを用いた。脱ボロン実験でのガスの導入量に対する影響は実験に必要とされるガス導入量の範囲(1.5×10<sup>-6</sup>~5.8×10<sup>-6</sup>Nm<sup>3</sup>・s<sup>-1</sup>)

では、大きな差は認められなかった。そこでこの範囲で導入ガス流量と粉体試料ふるい落とし量への影響を調べた。その結果を図6に示す。ふるい落とし量の設定が、0.2g/minでは、試験範囲内のガス流量の変化に対して200ml/min以降で若干増えているが、3g/minの場合はふるい落とし量の絶対量が大きく増えており、ガス流量がふるい落とし量(とくに大容量側)にある程度の影響を与えているものと考えられる。今後の脱ボロンの実験では、20g/minとしていることから、この影響は、明らかに考慮しなければならない事項である。

### 3.6 配管の目詰まり防止

装置のふるい落とし口直下部分の金属製配管には、十分な振動が伝わりにくく目詰まりが起りやすいため、銅製の棒でホッパーの振動の反動を利用し、叩くことにより粉体をふるい落とした。本装置でも、目詰まりはしにくくなったが、同様の現象は防げなかった。そこで念のためふるい落とし口直下部分のガラス製配管に写真5のような樹脂製の棒をもって、同様の措置を施した。その結果、措置をした方が配管への粉体の付着が明らかに起りにくいことが判った。なお、粉体の吸湿による付着に対しては、ガスの脱水、配管の加熱措置などをそのまま利用した。

### 3.7 粉体試料ふるい落とし量の調整

粉体試料ふるい落とし量は、現行装置では主に振動力と試料ふるい落とし口の編み目を調整して行ってきたが、本装置では写真2-a,bで紹介したようなス

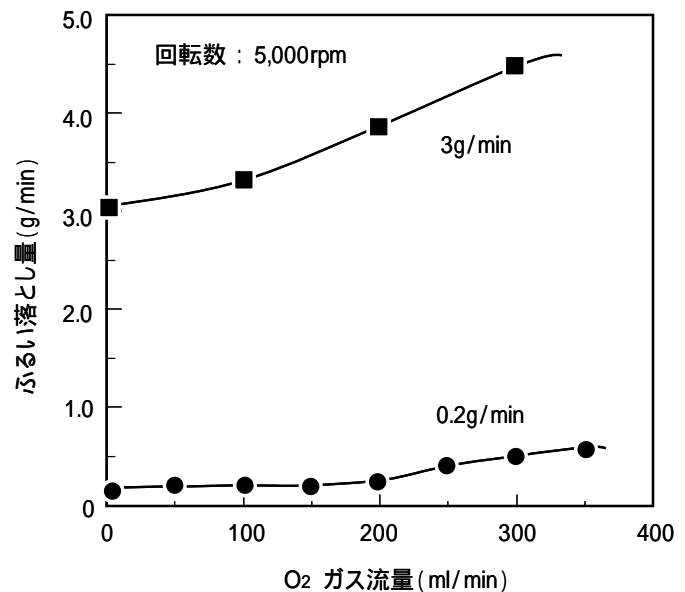


図6. ガス流量と粉体試料ふるい落とし量への影響

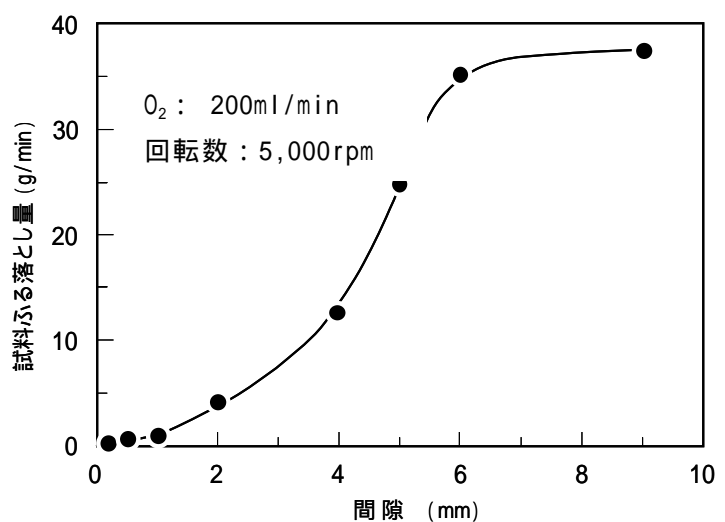


図7 粉体ストッパーの間隙と試料ふるい落とし量

トッパーで隙間を調整することで簡単に制御することができるようにした。試験試料を導入ガス 200Nml/min で測定した結果を図 7 に示す。その結果、脱ボロン実験での試料 (20 ~ 100  $\mu\text{m}$ ) ぶり落とし量 8 g/min はもとより 0.2 ~ 35g/min まで調整することが可能であった。振動力をモーターの回転数で表すとすると、この試験では 5,000rpm で行った。

### 3.8 実験の操作性

本装置の小型化によって、装置全体の移動が容易にできるようになった。それに伴い装置を炉の直上にセットでき、試料ぶり落としの配管が直線的にできるようにした。現装置の配管は図 8 に示すが、設置上配管が屈曲し、目詰まり等の原因となっていた。また、小型化によって熔融試料急冷のための取り出しの時にも装置の排除が簡単で、作業空間も容易に確保できるようにした。

### 3.9 ホッパーの圧力損失

現装置では、ホッパーが大きくホッパー側からのガスの導入が無いいため、粉体が熔融試料にインジェクションされるのにタイムラグが生じていた。その場合はホッパーの振り落とし口をシリコン栓で止めていたが、本装置では、写真 2-b で判るようにガス導入管とストッパーが、兼用される構造になっているのでタイムラグが大きく改善された。

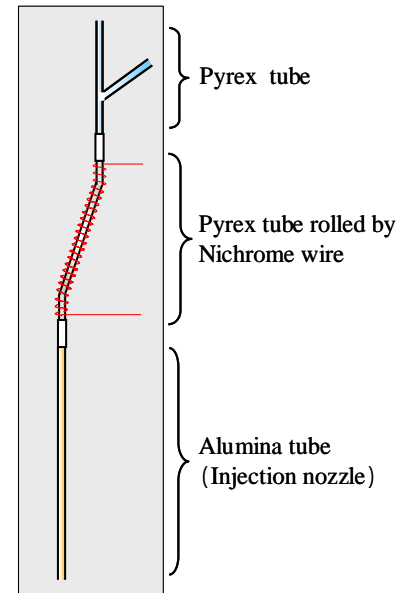


図 8. 現装置の配管と加熱措置

## 4 まとめ

はじめに述べたように、本装置の考案と製作に関する全ての技術やノウハウは、過去 2 年近くにわたり熔融シリコン中の不純物の除去に関する研究において養われてきたものである。それ故にいろいろな部分で現行装置との比較を行うことができた。その改善結果を以下に示す。

1. 装置の小型化に成功
2. 少量を連続して安定的に、インジェクションすることができた。
3. インジェクション時の圧力損失によるタイムラグを軽減することができた。
4. ガスと粉体をより平行に制御することが可能となり、インジェクションの制御範囲を向上させることができた。
5. 粉体粒度の許容範囲を 10  $\mu\text{m}$  ~ 200  $\mu\text{m}$  と拡張され、微細な粉体の制御も可能となった。
6. 本装置は、実験後炉に設置されて直上からの移動が簡便であり、急冷時の作業スペースが簡単に確保することができた。
7. 現在この同型応用装置が当該研究 (写真 6) 以外にも乾式還元処理による廃棄物からのリンの分離・回収という研究に活用されている。図 9 に大まかな原理を示す。

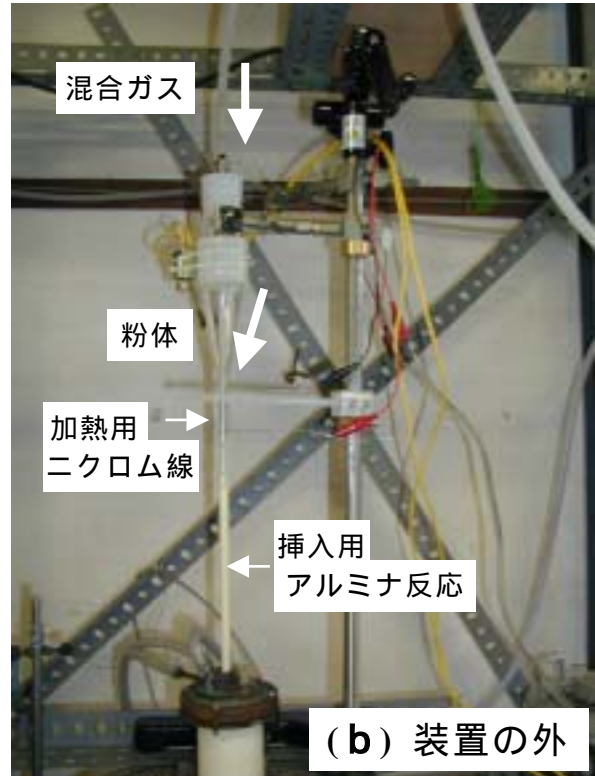
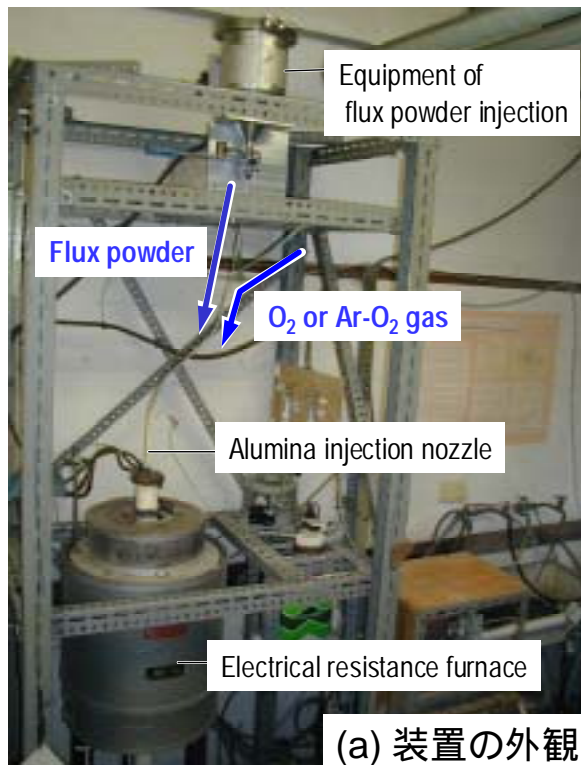


写真.6 脱 B の実験装置に組み込まれた現装置と本装置

### 今後の課題点

1. 固定具合の調整をさらに安定化させるために、モーターと本体を固定する治具、本体と軸などを固定する治具について検討する。
2. 実験用フラックスの粒径を堀場製作所 L920 粒度分布測定装置の乾式測定により粒度分布を測定してみる。
3. 写真 2-b の粉体ストッパー部分の操作性とふるい落とし量の再現性を向上させるため、その部位の機構を検討中である。

### 5 参考文献

- [1] 中東秀夫, 棚橋 満, 武田 邦彦, 山内 睦文: 資源・素材学会, (2002), D3-2, p.329 ~ 331
- [2] 中東秀夫: 修士論文, 2002, 2

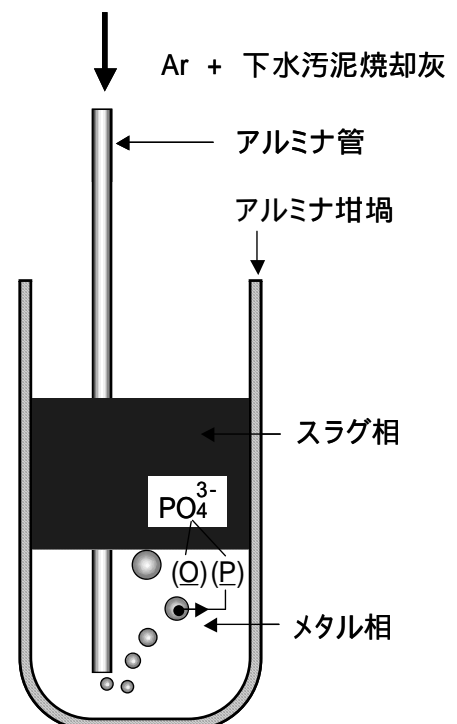


図 9. 乾式還元処理による廃棄物からのリンの分離・回収