

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5953368号
(P5953368)

(45) 発行日 平成28年7月20日(2016.7.20)

(24) 登録日 平成28年6月17日(2016.6.17)

(51) Int.Cl.

C30B 28/06 (2006.01)
C30B 29/06 (2006.01)

F 1

C30B 28/06
C30B 29/06 501Z

請求項の数 5 (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2014-509339 (P2014-509339)
 (86) (22) 出願日 平成24年4月30日 (2012.4.30)
 (65) 公表番号 特表2014-521577 (P2014-521577A)
 (43) 公表日 平成26年8月28日 (2014.8.28)
 (86) 國際出願番号 PCT/US2012/035803
 (87) 國際公開番号 WO2012/151155
 (87) 國際公開日 平成24年11月8日 (2012.11.8)
 審査請求日 平成27年3月12日 (2015.3.12)
 (31) 優先権主張番号 13/098,989
 (32) 優先日 平成23年5月2日 (2011.5.2)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 513278275
 ジーティーエイティー コーポレーション
 G T A T C O R P O R A T I O N
 アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州
 03054 メリマック, ダニエル ウ
 エブスター ハイウェイ 243
 (74) 代理人 100102668
 弁理士 佐伯 肇生
 (74) 代理人 100182486
 弁理士 中村 正展
 (74) 代理人 100189131
 弁理士 佐伯 拓郎
 (74) 代理人 100147289
 弁理士 佐伯 裕子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】大きな粒子径を有する多結晶材料を製造するための装置及び方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

断熱材に囲まれた高温帯と、

前記高温帯内のるつぼ支持ブロックに隣接するるつぼ枠であって、前記るつぼ支持ブロックと熱的に接触している底板を有するるつぼ枠と、

前記るつぼ枠の底板と熱的に接触している底を有する前記るつぼ枠内に収められたるつぼ

を備える、結晶成長装置であって、

前記るつぼ支持ブロック、前記るつぼ枠の底板、又は前記るつぼ支持ブロックと前記るつぼ枠の底板の両方が、冷却剤を内部に有する少なくとも1つの空隙を備え、前記少なくとも1つの空隙はるつぼ枠の底板の中心又はるつぼの底の中心に隣接し、

前記空隙は入口及び出口を含み、これによって冷却剤は空隙に入り、空隙内を循環して、るつぼ枠の底板又はるつぼの底に直接熱的に接触し、空隙を出ることができる、結晶成長装置。

【請求項2】

前記るつぼ支持ブロックが、前記少なくとも1つの空隙を備える、請求項1に記載の結晶成長装置。

【請求項3】

前記るつぼ枠の底板が、前記少なくとも1つの空隙を備える、請求項1に記載の結晶成長装置。

10

20

【請求項 4】

前記るつぼの底が、前記るつぼ枠の底板と接触している少なくとも1つの空隙を備え、
前記るつぼ枠の底板と接触している前記少なくとも1つの空隙が、冷却剤を内部に循環さ
 せるように構成された、請求項1に記載の結晶成長装置。

【請求項 5】

結晶材料を製造する方法であって、

i) 結晶成長装置の高温帯内のるつぼ支持ブロック上のるつぼ枠に含まれるるつぼを設置するステップであって、前記るつぼ枠が、前記るつぼ支持ブロックと熱的に接触している底板を有し、前記るつぼが、固体の原料を含み、前記るつぼ枠の底板と熱的に接触している底を有しているステップと、

ii) 前記るつぼ内の前記固体の原料を加熱して、液状の原料溶融体を生成するステップと、

iii) 前記るつぼ支持ブロック、前記るつぼ枠の底板、又は前記るつぼ支持ブロックと前記るつぼ枠の底板の両方の内部の少なくとも1つの空隙に少なくとも1種類の冷却剤を循環させるステップであって、前記少なくとも1つの空隙はるつぼ枠の底板の中心又はるつぼの底の中心に隣接し、前記冷却剤は入口から空隙に入り、空隙内を循環して、るつぼ枠の底板又はるつぼの底に直接熱的に接触し、出口から空隙を出るステップと、

iv) 前記高温帯から熱を除去して、前記結晶材料を生成するステップと
 を備える、方法。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】****関連出願**

本出願は、2011年5月2日に出願された米国特許出願第13/098,989号の利益を主張し、その開示内容全体を参照により明示的に本明細書に組み込むものである。

【0002】

本発明は、大きな結晶粒子径を有する結晶材料を製造する装置及び方法に関する。

【背景技術】**【0003】**

方向性凝固システム(DSS)や熱交換器法(HEM)炉などの結晶成長装置あるいは結晶成長炉では、シリコンなどの原料物質をるつぼ内で溶解して制御しながら再凝固し、インゴットを製造する。融解した原料から凝固したインゴットの製造は、特定可能ないくつかのステップで長時間かけて行われる。例えば、DSS法によりシリコンインゴットを製造するには、黒鉛るつぼ枠に収まっていることが多いるつぼに固体のシリコン原料を入れ、DSS炉の高温帯に設置する。次いで原料を加熱して液状の原料溶融体を生成し、シリコンの融点である1412^oCをはるかに上回る温度に炉を数時間保ち、確実に完全に溶解する。一旦完全に溶解したら、溶融体に配向性をもたせて凝固し、シリコンインゴットを生成するために、多くの場合、高温帯で温度勾配をもたせながら溶解した原料の熱を除去する。溶融体の凝固方法を制御することによって、出発原料物質よりも高い純度を有するインゴットを得ることができ、半導体産業や太陽電池産業などの高性能が求められるさまざまな用途で使用することができる。

【0004】

シリコン原料の典型的な方向性凝固においては、生成する凝固したシリコンインゴットは一般に多結晶質で、その結晶粒子径は小さくさまざままで、配向も不規則である。例えば通常、DSS法により製造した多結晶シリコンインゴットでは結晶粒子は不規則に配向し、そのサイズは500mm²以下であり、まれに1000mm²よりも大きな結晶粒子が観察される。不規則に配向したこれらの小さな粒界は、光で励起された電子及び正孔の再結合中心としてふるまうことが知られており、こうした欠陥により、多結晶シリコンで製造した太陽電池の効率が低下することが明らかになっている。

【0005】

10

20

30

40

50

それに比べて、十分大きな結晶粒子又は単結晶構造をもつよう製造したシリコンインゴットでは、太陽電池の効率が向上することが分かっている。しかし、このような材料を調製する方法は概して遅くて難しく、費用がかかる。例えば、DSS法あるいはHEM法のいずれかを用いて単結晶シリコンインゴットを製造するためには、単結晶シリコンの固体の種をシリコン原料と共にるつぼの底に置き、原料が完全に溶解した後もその種が保たれていれば、単結晶種の結晶配向に応じて溶融体が結晶化する。しかし、このような方法で種が溶解しないようにするにはたいてい難しく時間がかかり、HEM炉の場合は追加の装置や制御が必要である。さらに、生成するシリコンインゴットでは概して、最終のシリコンインゴットまでの単結晶材料の収率はごく並である。収率が低いと使用できる材料を大幅に失うことになり、加工のコストと所望の最終製品の価格が上がる。

10

【0006】

したがって、より高い総合効率を有する電池を提供するために、多結晶シリコンのように粒子径が大きく、それに応じて粒界が少ない結晶材料を経済的に、管理された状態のもとで製造する結晶成長装置及び方法が業界において必要とされている。

【発明の概要】

【0007】

本発明は、断熱材に囲まれた高温帯と、高温帯内のるつぼ支持ブロック上に、任意選択するるつぼ枠内に収められたるつぼとを備える結晶成長装置に関する。少なくとも1つの空隙が、るつぼの底、任意選択のるつぼ枠の底、及びノ又は、るつぼ支持ブロックにおいて設けられている。1つの実施形態では、このるつぼは、るつぼ支持ブロックの熱が伝達され、好ましくは、るつぼ支持ブロックと熱的に接触している底板を有するるつぼ枠に収められており、また、るつぼは、るつぼ枠の底板の熱が伝達され、好ましくは、るつぼ枠の底板と熱的に接触している。るつぼ支持ブロック、るつぼ枠の底板、又は、るつぼ支持ブロックとるつぼ枠の底板の両方には、少なくとも1つの空隙を備え、その空隙内で少なくとも1種類の冷却剤が循環するようになっている。別の実施形態では、このるつぼは、るつぼ支持ブロックの上にあり、また、るつぼ支持ブロックの熱が伝達される底、好ましくは、るつぼ支持ブロックと熱的に接触している底を有している。るつぼ支持ブロック、るつぼの底、又はるつぼ支持ブロックとるつぼの底の両方には、少なくとも1種類の冷却剤が循環するようなくとも1つの空隙を備えている。この実施形態において、るつぼは、好ましくは炭化ケイ素、窒化ケイ素、あるいはシリカと炭化ケイ素との、又は窒化ケイ素との複合材でできている。

20

【0008】

本発明はさらに、任意選択するるつぼ枠に収められている、固体の原料が入ったるつぼを、結晶成長装置の高温帯内のるつぼ支持ブロックの上に置くステップと、るつぼ内の固体の原料を加熱して液状の原料溶融体を生成するステップと、少なくとも1種類の冷却剤が、るつぼの底、任意選択のるつぼ枠の底、及びノ又は、るつぼ支持ブロックの内部の少なくとも1つの空隙を循環するステップとを備える結晶材料を製造する方法に関する。1つの実施形態では、この方法は、i)るつぼ枠に収められているるつぼを高温帯内のるつぼ支持ブロック上に置き、るつぼ枠は、るつぼ支持ブロック及び固体の原料が入ったるつぼの熱が伝達され、好ましくは、るつぼ支持ブロック及び固体の原料が入ったるつぼと熱的に接触している底板を有し、また、るつぼ枠の底板の熱が伝達され、好ましくは、るつぼ枠の底板と熱的に接触している底を有するステップと、ii)るつぼ内の固体の原料を加熱して液状の原料溶融体を生成するステップと、iii)少なくとも1種類の冷却剤が、るつぼ支持ブロック、るつぼ枠の底板、又は、るつぼ支持ブロックとるつぼ枠の底板の両方の内部の少なくとも1つの空隙を循環するステップと、iv)高温帯から熱を除去して結晶材料を生成するステップとを備える。別の実施形態では、この方法は、i)るつぼを高温帯内のるつぼ支持ブロック上に置き、るつぼには固体の原料が入っており、るつぼ支持ブロックの熱が伝達される底、好ましくは、るつぼ支持ブロックと熱的に接触している底を有するステップと、ii)るつぼ内の固体の原料を加熱して液状の原料溶融体を生成するステップと、iii)少なくとも1種類の冷却剤が、るつぼ、るつぼ支持ブロック、

30

40

50

又は、るつぼとるつぼ支持ブロックの両方、及び、るつぼ枠の底板の内部の少なくとも1つの空隙を循環するステップと、iv) 高温帯から熱を除去して結晶材料を生成するステップとを備える。

【0009】

上記の概要及び下記の詳細な説明の両方は、例示及び説明でしかなく、特許請求の範囲に記載されている本発明をさらに説明することを意図するものであると理解されるべきである。

【図面の簡単な説明】

【0010】

【図1】本発明の結晶成長装置の実施形態の断面図である。

10

【図2】本発明の結晶成長装置の実施形態の別の特徴を示す、図1の挿入Bの拡大図である。

【図3】本発明の結晶成長装置の実施形態の別の特徴を示す、図1の挿入Bの拡大図である。

【図4】本発明の結晶成長装置の実施形態の別の特徴を示す、図1の挿入Bにおける拡大図である。

【図5】本発明の結晶成長装置の種々の実施形態に用いられる空隙の図である。

【図6】本発明の結晶成長装置の種々の実施形態に用いられる空隙の図である。

【図6a】本発明の結晶成長装置の種々の実施形態に用いられる空隙の図である。

【図7】本発明の結晶成長装置の種々の実施形態に用いられる空隙の図である。

20

【図8】本発明の結晶成長装置の種々の実施形態に用いられる空隙の図である。

【図9】本発明の方法の実施形態を用いて調製した結晶材料の断面の一部である。

【図10】比較方法を用いて調製した結晶材料の断面の一部である。

【図11】図9及び図10の結晶材料について測定した粒子面積の分布を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0011】

本発明は、結晶成長装置及び結晶材料を製造する方法に関する。

【0012】

本発明の結晶成長装置は、炉、特に高温炉であり、通常約1000よりも高い温度でシリコンなどの固体の原料を加熱して溶融し、続いて、生成する溶解した原料物質の再凝固を促進して多結晶シリコンインゴットなどの結晶材料を生成することができる。例えば結晶成長装置は、方向性凝固システム(DSS)結晶成長炉でもよい。好ましくは、固体の原料に単結晶シリコンの種は含まれないが、単結晶、又は実質的に単結晶の結晶材料が望まれる場合は使用してもよい。

30

【0013】

本発明の結晶成長装置は、外部の炉室又は炉殻、及び炉殻内に内部の高温帯を備える。炉殻は、水などの冷却液を循環させる冷却水路を構成する外壁及び内壁を備えるステンレス鋼炉殻を含め、高温結晶化炉に用いられる、当分野におけるいかなる既知のものでよい。結晶成長装置の高温帯は、熱を供給して制御し、原料物質を溶融して再凝固ができる、炉殻内の内部領域である。高温帯は、断熱材で囲まれて構成され、この断熱材は、熱伝導率が低く、高温の結晶成長炉内の温度及び条件に耐えることができる、当分野におけるいかなる既知の材料でよい。例えば高温帯は、グラファイトの断熱材で囲まれてもよい。高温帯の形状及び寸法は、固定式あるいは可動式のいずれでもよい複数の断熱パネルで構成してもよい。例えば高温帯は、上面及び側面の断熱パネルが高温帯内部に設置したるつぼに対して上下に動くようにして、上面、側面、及び底面の断熱パネルで形成することができる。

40

【0014】

高温帯はさらに、任意選択できるつぼ枠内に収められたるつぼをるつぼ支持ブロック上に備え、さらに少なくとも1つの空隙を、るつぼの底、任意選択のるつぼ枠の底、及びノ又

50

は、るつぼ支持ブロックにおいて備えており、これは以下に詳しく説明する。るつぼは種々の耐熱材料、例えば、石英（シリカ）、グラファイト、炭化ケイ素、窒化ケイ素、シリカとシリコン炭素との、又は窒化ケイ素との複合材、熱分解窒化ホウ素、アルミナ、又はジルコニアで作ることができ、任意選択で窒化ケイ素などで被覆してインゴットが凝固後に割れないようにしてもよい。また、るつぼは少なくとも1つの側面及び底を有するさまざまな形状をしていてもよく、例えば、円筒形、立方体又は直方体（正方形の断面を有する）、あるいは先細の形状を含む。原料がシリコンのとき、好ましくは、るつぼはシリカで作り、立方体又は直方体の形状にする。

【0015】

るつぼは、任意選択でるつぼ枠内に収めることができて、これによりるつぼの側面及び底面を支持し、剛性をもたせることができ、特に加熱されたときに損傷したり、割れたり、あるいは柔らかくなったりしやすい材料で作ったるつぼに対して特に好ましい。例えば、るつぼ枠は、シリカ製るつぼには好ましいが、炭化ケイ素、窒化ケイ素、あるいはシリカと炭化ケイ素との、又は窒化ケイ素との複合材でできているるつぼには不要であり得る。るつぼ枠は、グラファイトなどの種々の耐熱材料で作ることができて、通常少なくとも1つの側板及び底板を備え、任意選択でさらに蓋を備える。例えば、立方体又は直方体の形状のるつぼに対しては、るつぼ枠も好ましくは立方体又は直方体の形状で、4つの側壁及び底板を有し、任意選択で蓋を備える。

【0016】

るつぼ、及び任意選択のるつぼ枠は、高温帯内のるつぼ支持ブロック上に備えられ、したがって、好ましくは熱的に直接接触して熱が一方から他方へ伝わるように互いに熱伝達する。るつぼ支持ブロックは、るつぼを結晶成長装置の中心の位置に設置するために、複数の台座の上に上げることができる。るつぼ支持ブロックは、グラファイトなどのいかなる耐熱材料でも作ることができて、るつぼ枠を使用している場合は、それと類似の材料が好ましい。

【0017】

また、高温帯は複数の発熱体などの少なくとも1つの加熱設備を備え、るつぼに入れた固体の原料を溶かす熱を供給することができる。例えば高温帯には、るつぼ上方の高温帯の上部領域に水平に位置する上部発熱体、及び上部発熱体の下方に、高温帯及びるつぼの側面に沿って垂直に位置する少なくとも1つの側面発熱体を備えることができる。高温帯内の温度は、種々の発熱体に供給する電力を調整することで制御することができる。

【0018】

前述のとおり高温帯にはさらに、るつぼの底、任意選択のるつぼ枠の底、るつぼ支持ブロック、又はこれらのあらゆる組み合わせにおいて少なくとも1つの空隙を備える。空隙は、その内部に少なくとも1種類の冷却剤を含み、循環するよう構成されている。冷却剤は、空隙を流れ、るつぼ内で生成した液状の原料溶融体を含むるつぼの下から熱を除去することができる任意の物質である。冷却剤は、アルゴン若しくはヘリウムなどの気体又は混合気体でもよく、あるいは水などの液体又は混合液でもよい。本発明の1つの実施形態では、結晶成長装置には、高温帯内のるつぼ支持ブロック上のるつぼ枠に収められているるつぼを備える。るつぼ枠には、るつぼ支持ブロックと熱的に接觸している底板があり、るつぼには、るつぼ枠の底板と熱的に接觸している底がある。るつぼ支持ブロック、るつぼ枠の底板、又は、るつぼ支持ブロックとるつぼ枠の底板の両方には、内部の冷却剤を循環するよう構成された少なくとも1つの空隙を備える。本発明の別の実施形態では、結晶成長装置には、高温帯内のるつぼ支持ブロック上にるつぼを備え、るつぼは、るつぼ支持ブロックと熱的に接觸している底を有し、るつぼ支持ブロック、るつぼの底、又は、るつぼ支持ブロックとるつぼの底の両方には、内部の冷却剤を循環するよう構成された少なくとも1つの空隙を備える。両方の実施形態において、空隙には好ましくは冷却剤の入口及び出口が別々にあり、これによって冷却剤は空隙に入り、空隙内を循環して、るつぼ内の液状の原料溶融体を下から冷却し、空隙を出ることができる。気体の冷却剤については、冷却剤を結晶成長装置、特に高温帯内に放出することができる。

10

20

30

40

50

【0019】

空隙は、さまざまな形状をしていてもよく、当分野におけるいかなる既知の方法を用いて備えることができて、例えば、るつぼの底、任意選択のるつぼ枠、及び／又は、るつぼ支持ブロックにおいて穴をあけたり、又はその一部を切り取って、あるいは所定の位置に空隙を有するこれらの構成品を前もって形成したりする方法が含まれる。また、空隙を構成品の1つに形成し、適切な形状にした挿入物を空隙内に設けて、所望の最終形状を作り出すこともできる。好ましくは、空隙は中心対称の断面形状をしており、空隙の中心に対して垂直な回転対称軸を有する。例えば空隙は、るつぼの底と平行な方向の断面形状が正方形、長方形、橍円形、又は円形でもよい。また空隙は、入口から出口へ一定、又は変化する厚さを有し、るつぼの底と平行な方向にらせん状の経路を形成してもよい。加えて空隙は、るつぼの底と垂直な方向の断面形状が凹形、又は凸形でもよい。

10

【0020】

さらに空隙は、るつぼの底、任意選択のるつぼ枠の底、及び／又は、るつぼ支持ブロックにおいて設けることができる。例えば空隙は、これらの構成品内の水平面の中央に配置することができ、好ましくは、るつぼの中心の下方に設ける。加えて、るつぼ、るつぼ枠、又は、るつぼ支持ブロックはそれぞれ、1つ以上の空隙を備えてもよい。例えば、正方形の形状のるつぼ支持ブロックには、中央に1つの空隙を備えてもよく、あるいは各隅の空隙と共に、中央に空隙を備えてもよい。また空隙は、構成品の垂直方向の中央にあってもよく、あるいは上面又は底の表面いずれかにあってもよく、こうして構成品の上方又は下方にある構成品と接触させることができる。好ましくは空隙は、できるだけるつぼ内の原料に近くなるように構成品内に備える。例えば空隙は、るつぼの底と熱的に接触しているるつぼ支持ブロックの表面、又は任意選択のるつぼ枠の底板に沿わせることができる。また、2つの隣接する構成品は、合わさることで冷却剤を循環させるためのより大きな空隙を形成する空隙をそれぞれ備えてもよい。例えば、るつぼ支持ブロックの上面に浅い円形の空隙を備え、るつぼ枠の底板の底の表面にも浅い円形の空隙を備えて、それらが合わせて冷却剤を循環させるためのより大きな円筒形の空隙を形成してもよい。その他の組み合わせは、当業者によって認識されるであろう。

20

【0021】

空隙の厚さは、その空隙を備える構成品の厚さ、及び使用される材料の種類によって変わり得る。通常、るつぼの底、又はるつぼ枠の底に備えられる空隙は、それぞれが概して相対的に薄く、るつぼ支持ブロック内に備えられる、概してより厚く、より強固な空隙よりも薄く、直径が小さくなるであろう。また、グラファイト又は炭化ケイ素などの材料で作られた構成品は、より広く、より大きな空隙に耐えることができる。例えば、るつぼの底に空隙があり、るつぼがシリカで作られている本発明の実施形態においては、るつぼが割れてこぼれないように空隙は相対的に小さく、薄くなるであろう。炭化ケイ素のるつぼにおいては、空隙の厚さは相対的により大きくてよい。また、グラファイトで作られたるつぼ枠の底板内に配置された空隙を使用している場合、その空隙は、るつぼ内の原料の重量に耐えられる適切なサイズと直径である必要があり、これは、650kgを超えるような大きな荷重がかかるときに特に重要である。るつぼ支持ブロック内に備えられる空隙は、通常大きく、グラファイトで作られるが、るつぼ支持ブロックの完全性を損なうことなく、大きく、厚くすることができる。特定の材料で作られている特定のるつぼ、硬化性的枠、及び、るつぼ支持ブロックにおける所望の空隙サイズは、必要以上の実験をすることなく当業者によって容易に決めることができるであろう。

30

【0022】

図1は、本発明における結晶成長装置の実施形態の断面図である。しかし、これらは本発明を本質的に例示するだけのものであって、限定するものではなく、例として提示したにすぎないことは当業者にとって自明である。多くの変形例や他の実施形態が通常の技術力を有する当業者が理解する範囲において存在し、本発明の範囲内に含まれると考えられる。さらに、特定の構成が例示であって、実際の構成は特定のシステムによることを当業者なら理解するであろう。また、示された特定の要素の均等物を通常の実験内で当業者は

40

50

認識し、識別することができるであろう。

【0023】

図1に示す結晶成長装置10は、炉殻11、及び炉殻11内に断熱材13によって囲まれて構成される高温帯12を備える。るつぼ枠15内の、原料16が入ったるつぼ14は、台座18の上に上げられたるつぼ支持ブロック17上の高温帯12に備えられる。高温帯12にはさらに、上部ヒーター19a及び2つの側面ヒーター19bを備える加熱設備を含む。断熱材かご13は、矢印Aで示すように上下に動き、これが結晶成長装置10の高温帯から熱を除去する主要な手段であり、こうして高温帯12及びその中に含まれる構成品を外殻11にさらし、この外殻は、水などの冷媒を用いて冷却される。

【0024】

結晶成長装置10の高温帯12はさらに、図1で強調表示している区画Bの拡大図である図2、図3、及び図4にそれぞれ示すとおり、るつぼ支持ブロック17内、るつぼ枠15の底板15a内、又はるつぼ14の底14b内に空隙20、30、及び40を備える。これらの図それぞれに示すとおり、るつぼの底14bは、るつぼ枠の底板15bと熱的に接触しており、るつぼ枠の底板はさらに、るつぼ支持ブロック17と熱的に接触しており、空隙20、30、及び40は、るつぼ14の中心C、及びその中に入っている原料16の下に位置している。空隙20、30、及び40はさらに、冷却剤入口21、31、及び41、並びに冷却剤出口22、32、及び42をそれぞれ含み、これらは交換可能に使用することができる。

【0025】

図5、図6、図6a、図7、及び図8はそれぞれ、本発明の結晶成長装置に使用できる空隙の具体例を示す。特に図5は、1つの冷却剤気体入口51、及び3つの冷却剤気体出口52と共に、らせん状空隙50を有するるつぼ枠55の底板の略図である。見て分かるとおり、らせん状空隙50は、るつぼ枠底板の上面にあるので、その上に配置されたるつぼの底と熱的に直接接触することになる。図6は、上面の水平方向中央に配置された円形開口63を形成する円筒形空隙60を有するるつぼ支持ブロック67の略図であり、その上に配置されたるつぼ枠の底板、又は、るつぼの底のいずれかと熱的に直接接触することになる。図6aは、このるつぼ支持ブロックの別の図で、対角線に沿った断面である。空隙60には、4つの冷却剤出口62と共に、1つの冷却剤入口61を有する（3つが図6中に見えており、2つが図6a中に見えている）。図7及び図8は、凸形及び凹形の空隙挿入物それぞれの断面図であり、そのいずれかを、冷却剤入口（61と、71又は81）及び冷却剤出口（62と、72又は82）を合わせて所望の凹形又は凸形の空隙形状を作るよう、図6a中の空隙と同様の円筒形の空隙内に配置することができる。

【0026】

本発明の結晶成長装置は、シリコンなどの固体の原料から、多結晶シリコンインゴットなどの結晶材料を調製するための方法に用いることができる。したがって本発明はさらに、結晶材料を調製する方法に関する。この方法は、任意選択するるつぼ枠内に収められた、固体の原料が入っているるつぼを結晶成長装置の高温帯内のるつぼ支持ブロック上に置くステップと、るつぼ内の固体の原料を加熱して液状の原料溶融体を生成するステップとを備える。好ましくは、るつぼには少なくとも1種類の固体の原料が入っており、単結晶種は含まない。一旦固体の原料が完全に溶解した後、この方法はさらに、るつぼの底、るつぼ枠の底板、及び/又は、るつぼ支持ブロックの内部の少なくとも1つの空隙に少なくとも1種類の冷却剤を循環させるステップと、高温帯から熱を除去して結晶材料を生成するステップとを備える。冷却剤の循環は、熱を除去し始める前でも、熱の除去と同時でもよい。るつぼ、任意選択するるつぼ枠、るつぼ支持ブロック、及び空隙は、上述したいずれでもよい。この方法の1つの実施形態では、るつぼ枠に収められているるつぼをるつぼ支持ブロック上に置き、そのるつぼ枠には、るつぼ支持ブロックと熱的に接触している底板があり、そのるつぼには、固体の原料が入っており、るつぼ枠の底板と熱的に接触している底がある。るつぼ内の固体の原料を加熱し、完全に溶融して液状の原料溶融体を生成した後、少なくとも1種類の冷却剤を、るつぼ支持ブロック、るつぼ枠の底板、又は、るつぼ

10

20

30

40

50

支持ブロックとるつぼ枠の底板の両方に設けられた少なくとも1つの空隙内に循環させ、熱を高温帯から除去する。この方法の別の実施形態では、るつぼをるつぼ支持ブロック上に置き、そのるつぼには、固体の原料が入っており、るつぼ支持ブロックと熱的に接觸している底があり、固体の原料をるつぼ内で加熱して完全に溶解し、液状の原料溶融体を生成する。少なくとも1種類の冷却剤を、るつぼ、るつぼ支持ブロック、又は、るつぼとるつぼ支持ブロックの両方に設けられた少なくとも1つの空隙に循環させ、熱を高温帯から除去して結晶材料を生成する。

【0027】

本発明の方法及び装置においては、るつぼの底、るつぼ枠の底板、及び／又は、るつぼ支持ブロックの内部の空隙を冷却剤が循環するが、この方法及び装置によって製造された結晶材料では、るつぼの下で冷却剤を循環させるために用いる空隙がない同様の方法及び装置を用いて製造された結晶材料と比べて、結晶の粒子径が著しく大きいことが分かっている。1つの例として、本発明の方法及び装置を用いて多結晶シリコンインゴットを調製し、比較例として、空隙又は循環する冷却剤を備えていない比較の方法を用いて多結晶シリコンインゴットを調製した。インゴットはワイヤソーで切断し、粒界は光学スキャナーを用いて、露出した断面の部分で確認した。得られた画像を図9（本発明の方法及び装置を用いて製造した多結晶シリコン）及び図10（比較の方法及び装置を用いて製造した多結晶シリコン）に示す。画像解析ソフトウェアを用いて粒子径を定量化し、分布を計算した。統計的な粒子径の分布を以下の表1及び図11のグラフで示す。

【0028】

【表1】

表 1

粒子面積範囲	図9(実施例) 各範囲の %	図10(比較例) 各範囲の %
< 5	0.1	0.1
5-10	0.1	0.1
11-20	2.5	5.2
21-30	2.2	6.4
31-40	1.8	4.0
41-50	1.2	3.5
51-60	1.8	3.6
61-70	1.7	3.0
71-80	2.2	2.9
81-100	3.4	2.7
101-150	3.8	9.6
151-250	2.8	7.2
251-500	9.2	18.5
> 500	66.8	33.0

【0029】

データが示すとおり、本発明の方法により製造された多結晶シリコンインゴットの66.8%の平均粒子径が 500 mm^2 より大きい一方、比較の多結晶シリコンインゴットでは33%のみが同じ範囲の粒子径であった。したがって、著しく大きな粒子径を有する多結晶シリコンが、本発明の方法及び装置によって製造される。加えて、本発明の方法で製造された多結晶シリコンの結晶粒子は、シリコンインゴットの下から上まで実質的に柱状

10

20

30

40

50

で、インゴットの上半分も下半分も粒子径が大きいことが明らかになっている。さらに、結果として生じる結晶粒子の配向は再現することが観察された。すなわち、同じ構成品に備えられた同じ空隙と共に同じ方法を用いると、同様の粒子径及び配向を有する結晶材料が製造された。結果として生じる結晶材料は、全体的に大きな粒子径を有するが、より優れた電気的及び構造的特性を備え、それによって太陽電池の性能が総合的に改善し、ウエハをより薄く切断できるようになると予想される。

【0030】

上記の本発明の好ましい実施形態は、説明及び記載の目的のために示したものである。本発明の内容を網羅するものではなく、開示されている形態に厳密に本発明を限定することとも意図していない。変形例及び変更例は上記教示に鑑み可能であり、あるいは本発明の実施によても習得可能である。検討している特定の利用にふさわしく、種々の実施形態において種々の変形例を用いて本発明を当業者が利用できるよう、本発明の原理及び実際の応用を説明するために、実施形態を選択し、説明した。本発明の範囲は、ここに添付する特許請求の範囲及びその均等物により規定するものである。10

【図1】

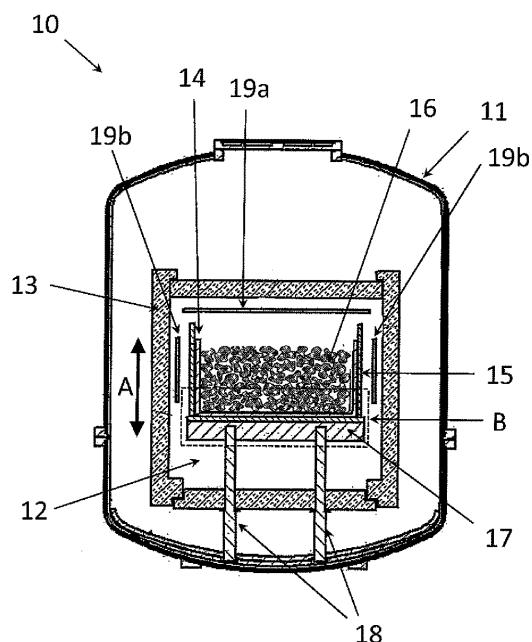


図1

【図2】

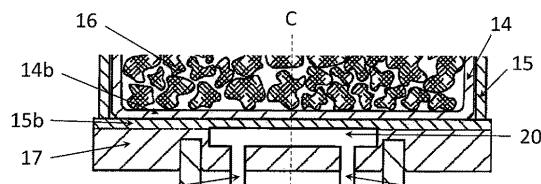


図2

【図3】

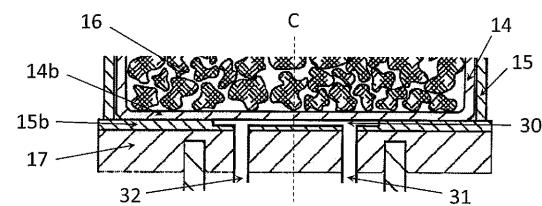
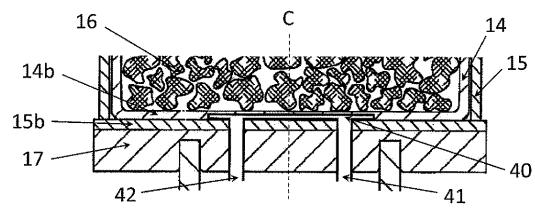
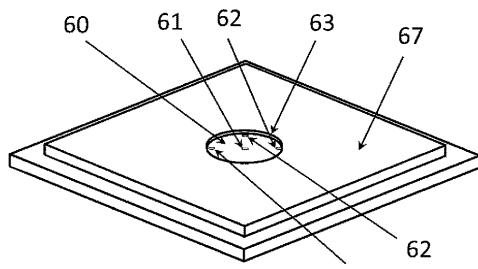


図3

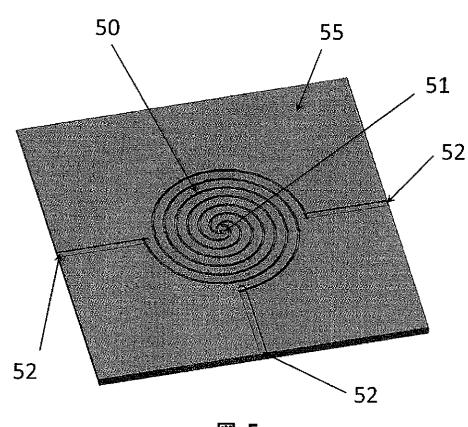
【図4】



【図6】



【図5】



【図6a】

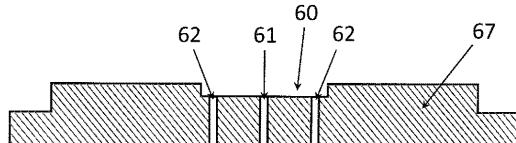
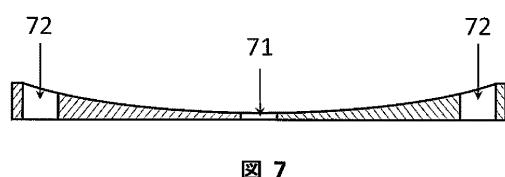


図6a

【図7】



【図9】



【図8】

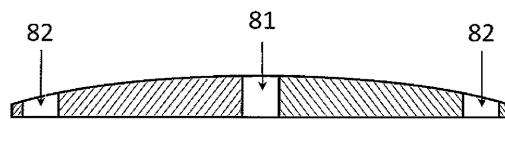


図9

【図 10】



図 10

【図 11】

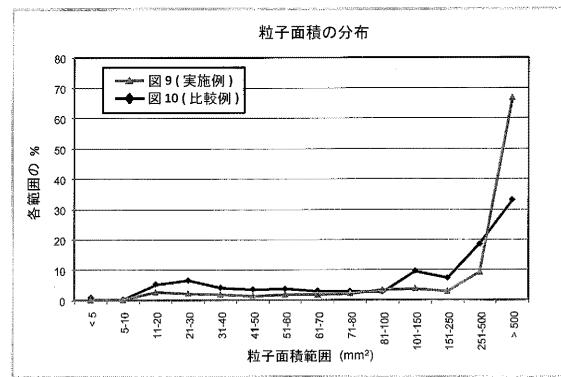


図 11

フロントページの続き

(74)代理人 100158872
弁理士 牛山 直子

(72)発明者 ラヴィ , ブヴァラガサミー ガネサン
アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州 03063 ナシュア , ノルマンディー ウェイ 1
7

(72)発明者 パルタサラティ , サンタナ ラガヴァン
アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州 03063 ナシュア , ノルマンディー ウェイ 2

(72)発明者 ラッキー , デーヴィッド
アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州 03054 メリマック , バウワーズ ランディング
ドライブ 5 , アパートメント 306

(72)発明者 アンドルキヴ , アンドレ
アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州 03049 ホリス , ウィーラー ロード 227

(72)発明者 リトル , デーヴィッド
アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州 03031 アマースト , ジョーンズ ロード 8

(72)発明者 バティ , バラ
アメリカ合衆国 マサチューセッツ州 01876 トゥックズベリー , ヘンリー ジェイ ド
ライブ 32

(72)発明者 シャルティエ , カール
アメリカ合衆国 ニューハンプシャー州 03104 マンチェスター , メープルハースト ア
ベニュー 152

審査官 國方 恭子

(56)参考文献 国際公開第2010/005705 (WO , A1)
特開平11-011924 (JP , A)
特開2005-162507 (JP , A)
米国特許出願公開第2009/0090296 (US , A1)
特開平09-071497 (JP , A)
特開平09-255484 (JP , A)
特開平11-310496 (JP , A)
特開平10-139580 (JP , A)
特開2000-290096 (JP , A)
特開平09-100199 (JP , A)
特開2007-197274 (JP , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

C30B 1/00 - 35/00