(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3891626号
(P3891626)
(45)発行日　平成19年3月14日(2007.3.14)　(24)登録日　平成18年12月15日(2006.12.15)

(51)Int.Cl.　F I
C01B 33/029 (2006.01)　C01B 33/029

請求項の数 3　(全 9 頁)

(21)出願番号　特願平9-12714
(22)出願日　平成9年1月27日(1997.1.27)
(65)公開番号　特開平10-212112
(43)公開日　平成10年8月11日(1998.8.11)
審査請求日　平成15年5月28日(2003.5.28)

(73)特許権者　000003182
株式会社トクヤマ
山口県周南市御影町１番１号
(72)発明者　山本　朋浩
山口県徳山市御影町１番１号　株式会社トクヤマ内

審査官　後藤　政博

(56)参考文献　特開平０６－１２７９２５（ＪＰ，Ａ）
特開平０８－０５２７１０（ＪＰ，Ａ）
特開昭６３－１９３８２４（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－２９９５６４（ＪＰ，Ａ）
特開平１０－１５８００６（ＪＰ，Ａ）

最終頁に続く

(54)【発明の名称】反応器

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
ケーシング内に、複数に分割されたポリシリコンのパーツを配列して成るインサート管を内蔵して内壁を構成した反応器であって、上記インサート管は、その外面となる側に該パーツ間の突合せ部を含む溝をそれぞれ形成し、該溝に接着剤を突き合せ部全長にわたって充填することにより、各パーツ同士が接合されたことを特徴とする高純度シリコン析出用反応器。
【請求項２】
インサート管が長方形の板状のパーツに分割されてなる請求項１記載の高純度シリコン析出用反応器。
【請求項３】
インサート管が筒状のパーツに分割されてなる請求項1記載の高純度シリコン析出用反応器。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術】
本発明は、シラン類の分解・還元反応装置および流動床法による高純度多結晶シリコンの析出反応に好適に使用される反応器に関する。詳しくは、ポリシリコンより成るインサート管を内蔵した反応器のガスリークの問題を解決し、上記反応を効率よく実施するのに好適な反応器を提供する。

【０００２】
【従来の技術】
多結晶シリコンの製造においてモノシラン類の分解反応を利用し、気相析出反応により粒状ポリシリコンを製造する方法は既に知られている。
【０００３】
この反応に用いる反応器は高純度の粒状ポリシリコンを得るために、粒子の接触する部分は全てシリコンで作製するのが望ましい。反応器をシリコンで作製することは、製品の純度面において最良の方法であるが、シリコンは非常に脆い材質であるため、ここで使われる反応器は通常、金属製のケーシング内にシリコンより成るインサート管を設けた２重構造がとられている。その形状はケーシングの内部形状に合わせて決定される。例えば、ケーシングの内部形状が円筒状の場合、インサート管の形状は円筒形がまた、円錐形を有する内部形状であれば円錐形がそれぞれ採用される。
【０００４】
従来、シリコンのインサート管は、その特性上、大型の成形体を直接製造することが困難であるため、長方形の板状のパーツを複数枚配列して円筒形および、逆円錐形を構成させていた。この場合の形状の保持は、図２に示すようにポリシリコンよりなる板状のパーツ１を外周よりモリブデンワイヤー２を用いて締め付けることによって行われていた。
【０００５】
【発明が解決しようとする課題】
しかしながら、上記インサート管を内蔵した反応器を使用した場合、パーツ１の隙間からガスがリークしてしまい、反応および、流動に支障をきたしていた。即ち、上記反応で使用されるガスは、反応器の下から導入され、反応器内で析出分解反応した後、排ガスラインから出て行くが、その過程で前記パーツの隙間からガスの漏洩が起き、この場合、所定量のガスが反応器内に導入されないため、反応に支障をきたすのと同時に、流動不良を起こし、シリコン粒子同士、およびインサート管に粒子が固結し、それ以上製造を続けることができなくなる。このような場合は、インサート管を再び作製する必要が生じてくる。
【０００６】
また、製品の純度面から言うと、リークしたガスがそのまま反応器系外に排気されるのなら問題はないが、リークしたガスが再び反応器系内に入ってくると、ケーシングに接触した純度の劣るガスが、シリコン粒子に再度接触することになり、高純度多結晶シリコンを製造する上では不利となる。
【０００７】
以上の理由により、シリコンのインサート管を内蔵した反応器においては該インサート管においてガスの漏洩が無いものを開発することが課題とされていた。
【０００８】
【課題を解決するための手段】
本発明者等は上記問題を解決すべく鋭意研究を行った結果、複数に分割されたポリシリコンのパーツを配列してインサート管を構成し、その外面におけるパーツ間の突合せ部分に、これを含む溝を形成し、該溝に接着剤を充填して、各パーツを接合することにより、インサート管からのガスのリークを防止する事ができると共に、インサート管内のシリコン粒子に接着剤が直接接触する事による汚染も防止し得ることを見い出し、本発明を完成するに至った。
【０００９】
【発明の実施の形態】
以下、本発明を添付図面に従って詳細に説明するが、本発明はこれらの添付図面に限定されるものではない。
【００１０】
図１は、本発明の反応器の代表的な態様を示す部分斜面斜示図である。
【００１１】
即ち、本発明は、ケーシング７内に、複数に分割されたポリシリコンのパーツ１を配列

して成るインサート管６を内蔵して内壁を構成した反応器であって、上記インサート管６は、その外面となる側に該パーツ間の突合せ部を含む溝９をそれぞれ形成し、該溝９に接着剤８を突き合せ部全長にわたって充填することにより、各パーツ同士が接合されたことを特徴とする高純度シリコン析出用反応器（以下、単に「反応器」という）である。

【００１２】

尚、４は、ガス導入配管、５はガス（排ガス）出口配管である。

【００１３】

本発明の対象とする反応器は、その内部で高純度のシリコンを析出する反応を行うためのものが特に制限されない。例えば、流動床方式によるモノシラン類の分解析出反応、粒状ポリシリコン中の水素を取り除く反応等に使用される反応器が挙げられる。

【００１４】

本発明において、反応器を構成するケーシング７の形状は、上記対象とする反応に応じて適宜決定すればよい。例えば、流動床方式によるモノシラン類の分解析出反応に使用する反応器の場合、図１に示すように、ガス導入管４、ガス（排ガス）出口配管５をそれぞれ設けた筒状、或いは、図示していないが逆円錐形の容器が使用される。

【００１５】

また、ケーシング７の材質は公知の材質が特に制限無く使用される。一般には、鉄－ニッケル－クロム系合金、ニッケル基合金およびコバルト基合金等が使用される。

【００１６】

上記反応器のケーシング７内には、複数に分割されたポリシリコンのパーツ１を配列して成るインサート管６によって内壁が構成される。

【００１７】

本発明において、インサート管を流動床によるモノシラン類の分解析出反応、および粒状ポリシリコン中の水素を取り除く装置に使用する場合、シリコンインサート管はシリコン粒子が流動することにより、磨耗が起こる。この磨耗により流動するシリコン粒子が汚染されることを防ぐ目的から、上記シリコンインサート管には高純度の多結晶シリコンが好適に採用される。インサート管に使用するシリコンは、１００Ωｃｍ以上の比抵抗値のものを使用することが望ましい。

【００１８】

本発明において、インサート管６を構成するパーツ１の基本的な形状は、これらの端面を突き合わせてインサート管が構成可能なものであれば特に制限されない。

【００１９】

例えば、前記の図１で示した長方形の板状のパーツ、図３に示すような円筒型に分割されたパーツ等の態様が挙げられる。

【００２０】

上記パーツ１の突合せ面となる端面は、平面同士が突き合わされるように加工されたものが一般的であるが、図４に示すように端面を加工し、突き合わされるパーツ間で契合するようにすることにより、後記のガスシール性を一層向上すると共に、接合時の強度を一層高めることができ好ましい。

【００２１】

また、上記長方形の板状のパーツを複数枚用いてインサート管を形成する態様においては、なるべく多数のパーツに分割されている方が円形に近くなるため、ケーシングとの隙間が少なくなるため好ましい。即ち、多分割されたパーツを使用することにより、反応において熱伝導が良くなり、エネルギーコストの低減化を図ることができる。

【００２２】

一般に、上記板状のパーツは、構成するインサート管の大きさにもよるが、６分割以上に分割されたものを使用することが望ましい。

【００２３】

本発明の特徴は、上記パーツを配列してインサート管を構成したとき、その外面となる側に、該パーツ間の突合せ部を含む溝９をそれぞれ形成し、該溝に接着剤８を充填すること

により、各パーツ同士を接合したことにある。

【００２４】

即ち、上記構成により、インサート管の内面における突き合わせ部分は接着剤を会することなく突き合わされているため、内部に反応のために供給される充填物に接着剤が直接接触するのを避ける事ができる。また、上記の方法を用いて成形したインサート管は外面の突き合わせ部に接着剤が充填されているため、シール性に優れ、該パーツ間からのガスのリークを完全に防止できる。

【００２５】

上記溝の形成は、突合せ部に存在するパーツ１の一方或いは双方の端面の一部を切り欠くことによって行う態様が一般的である。また、溝９の形状も特に制限されないが、図５の（ａ）、（ｂ）、（ｃ）に示すように、シリコンインサートパーツ１を用いてインサート管を形成したとき、該パーツ間に形成される溝９の断面形状が三角、四角、半円等が一般に採用される。

【００２６】

また、上記溝９は、パーツ間の突合せ部の全長をカバーするように形成することが望ましい。

【００２７】

本発明において、上記溝に充填する接着剤は、ポリシリコンを接着可能な公知の接着剤が特に制限無く使用されるが、本発明の用途より、耐熱性を有するものが一般に使用される。特に、セラミック系耐熱接着剤が使用される。また、接着剤は、通常、接着強さを増加させるために、金属酸化物が成分中に含まれている。

【００２８】

本発明において使用される接着剤は、上記金属酸化物として、好ましくは、二酸化珪素、酸化アルミニウム、および酸化マグネシウムなどを含むものが、好適に使用される。さらに好ましくは、上記金属酸化物として、酸化マグネシウムが使用される接着剤が、好適に使用される。

【００２９】

具体的には、最高使用温度が１００℃以上で、圧縮強さが１Kg／ｃｍ^{2}以上で、曲げ強さが１Ｋｇ／ｃｍ^{2}以上で、熱膨張率がポリシリコンに近似したものが好適に使用される。

【００３０】

【発明の効果】

以上の説明により理解されるように、複数に分割されたポリシリコンのパーツよりなり、上記パーツを配列した時に外面となる側に、該パーツ間の接合部を含む溝をそれぞれ形成し、該溝に接着剤を充填することにより、各パーツを接合したインサート管によって内壁が構成されたことを特徴とする本発明の反応器は、ガスのシール性において非常に優れている。

【００３１】

よって、この反応器は良好な流動を得ることができ、長時間の析出反応運転が可能になる。また、接着剤が多結晶シリコンに接触することがないため、純度面においても非常に優れたインサート管である。

【００３２】

従って、反応条件、原料の純度にもよるが、本発明の反応器を使用すれば、単結晶化した後の比抵抗値で２００Ωｃｍ以上、好ましくは５００Ωｃｍ以上、さらに好ましくは１，０００Ωｃｍ以上のポリシリコンを得ることが可能である。

【００３３】

また、粒状ポリシリコン中の水素を取り除く装置に上記反応器を使用した場合でも、同様の効果を発揮することができる。

【００３４】

【実施例】

本発明をさらに具体的に説明するため以下の実施例及び比較例を挙げて説明するが本発明

はこれらの実施例に限定されるものではない。

【００３５】

実施例１

直径８インチ、高さ２ｍの縦型流動床析出反応装置を使用し、反応器のインサート管には、図６に示すような多結晶シリコンを厚さ１０ｍｍに切り出したもの８枚を８角錐状（ａ）及び８角柱状（ｂ）に組み合わせ、インサート管を形成したときに外周となる側の溝に接着剤８を充填した。その時、溝の断面形状は、三角とし、接着剤は、酸化マグネシウムを含有した接着剤を使用した。詳しくは、ハイパーランダムＣ－９１９（商品名；昭和高分子株式会社製）を使用した。その後、この２つのインサート管を図７の流動析出装置のケーシングに合わせた形状となるように積載し挿入した。

【００３６】

尚、図において、１０はヒーターであり、その他の符号は図１に準ずる。

【００３７】

また、インサート管の底面には、配管の位置に穴をあけた８角形のシリコン板を設け、積載されたインサート管の継ぎ手部分と底面の継ぎ手部分には、前記と同様に外側に溝を設け、該溝に同様な接着剤を充填して接合した。

【００３８】

原料ガスには水素で濃度２０％に希釈したモノシランガスを使用した。実験開始に際して予めインサート管内には平均粒径６００μｍのシリコン粒子よりなる内部充填物３を１５ｋｇ充填した。流動床へ供給する種シリコン粒子には平均粒径１５０μｍのものを使用し、供給速度は５０ｇ／ｈとした。反応温度は７５０℃とした。原料ガスは、流動床内のガス線速が１．０ｍ／ｓとなるようにした。

【００３９】

以上の条件下で４００時間実験を継続したが、原料ガスの所定量は順調に流動床に導入され、運転上のトラブルは何等発生しなかった。また、製品シリコンの平均粒径は１０００μｍであった。

【００４０】

実施例２

縦型流動床析出反応装置の直径を１０インチ、高さ２．２ｍとし、反応器のインサート管には多結晶シリコンを厚さ１０ｍｍに切り出したもの１４枚を１４角形状に組み合わせ、インサート管を形成したときに外周となる側の溝に接着剤を充填した他は、実施例１と同様にして粒状多結晶シリコンの製造を行った。５００時間実験を継続したが、運転上のトラブルは何等発生しなかった。また、製品シリコンの平均粒径は１０００μｍであった。

【００４１】

比較例１

接着剤を充填せずにモリブデンワイヤーで縛っただけのシリコンインサート管を使用したこと以外は、実施例１と同様にして粒状多結晶シリコン製造を行った。実験開始後、５時間経過した時点で流動床の固結が発生し、実験継続が不可能になった。装置を解放して確認したところ、ケーシングとインサート管との環状空間部に多量の微粉が付着していた。このことから、供給した原料ガスの多くが、インサート管の隙間を通り抜け、排気側にバイパスしたために流動床内に所定量の原料ガスが導入されず、粒状多結晶シリコンの固結に至ったものと考えられる。

【図面の簡単な説明】

【図１】本発明の反応器の代表的な態様を示す斜視図（部分断面）。

【図２】本発明の反応器に使用する多結晶シリコン製のインサート管の代表的な態様を示す斜視図

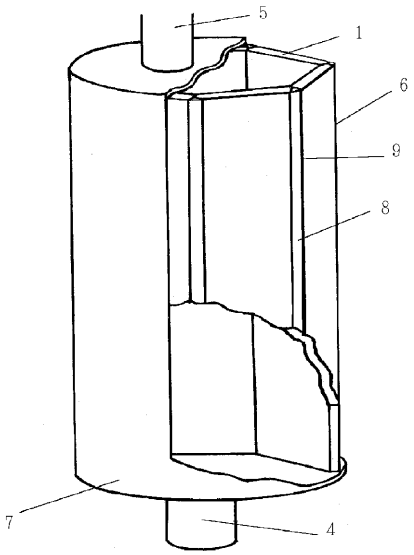
【図３】本発明の反応器に使用する多結晶シリコン製の円筒型のインサート管の態様を示す斜視図。

【図４】本発明の反応器に使用する多結晶シリコン製のパーツの端面を加工した円筒型のインサート管の態様を示す斜視図（部分断面）。

【図５】本発明を説明するための多結晶シリコン製のインサート管パーツ、および溝の形状を示す斜視図。
【図６】実施例で使用した多結晶シリコン製のインサート管を示す斜視図。
【図７】実施例で使用した縦形流動床析出反応装置を示す断面図。
【符号の説明】
１　板状のポリシリコンパーツ
２　モリブデンワイヤー
３　内部充填物
４　ガス導入配管
５　ガス(排ガス)出口配管
６　インサート管
７　ケーシング
８　接着剤
９　溝
１０　ヒーター

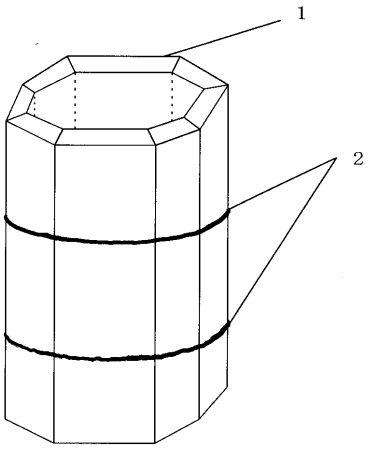
【図１】

図１



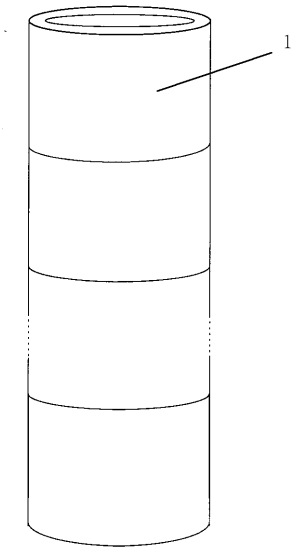
【図２】

図２



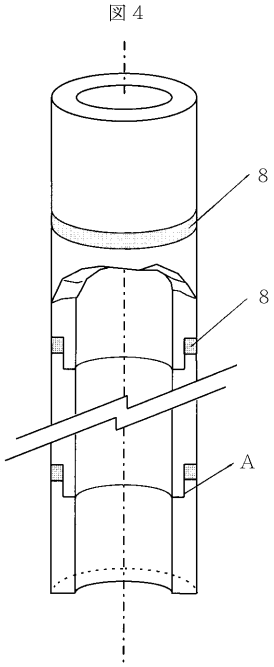
【図３】

図３



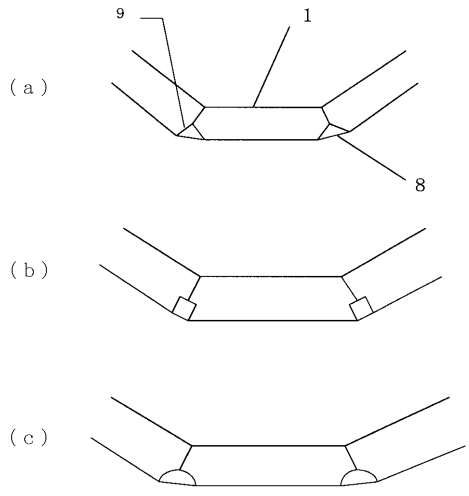
【図４】

図４



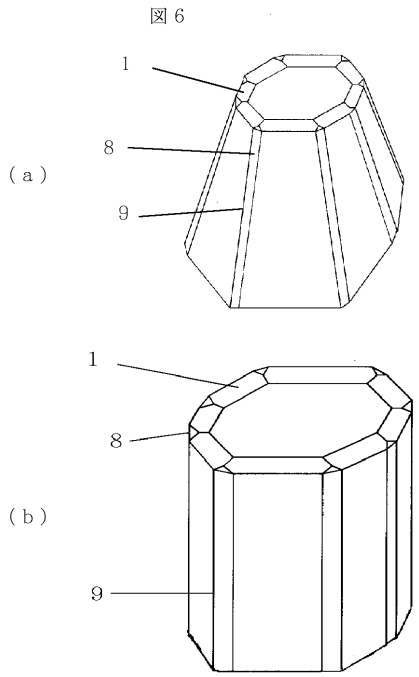
【図５】

図５



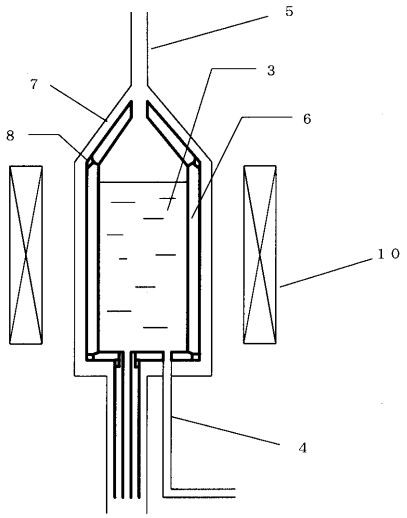
【図６】

図６



【図７】

図７



フロントページの続き

(58)調査した分野(Int.Cl., ＤＢ名)
C01B 33/00 - 33/193
B01J 10/00 - 12/02, 14/00 - 19/32