

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 3 月 3 日 (03.03.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/019106 A1

- (51) 国際特許分類: C01B 33/03
(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/011774
(22) 国際出願日: 2004 年 8 月 17 日 (17.08.2004)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2003-298641 2003 年 8 月 22 日 (22.08.2003) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社トクヤマ (TOKUYAMA CORPORATION) [JP/JP];
〒7458648 山口県周南市御影町 1 番 1 号 Yamaguchi (JP).
(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 中島 淳一郎

(NAKASHIMA, Junichirou) [JP/JP]; 〒7458648 山口県周南市御影町 1 番 1 号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP). 小田 開行 (ODA, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒7458648 山口県周南市御影町 1 番 1 号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP).

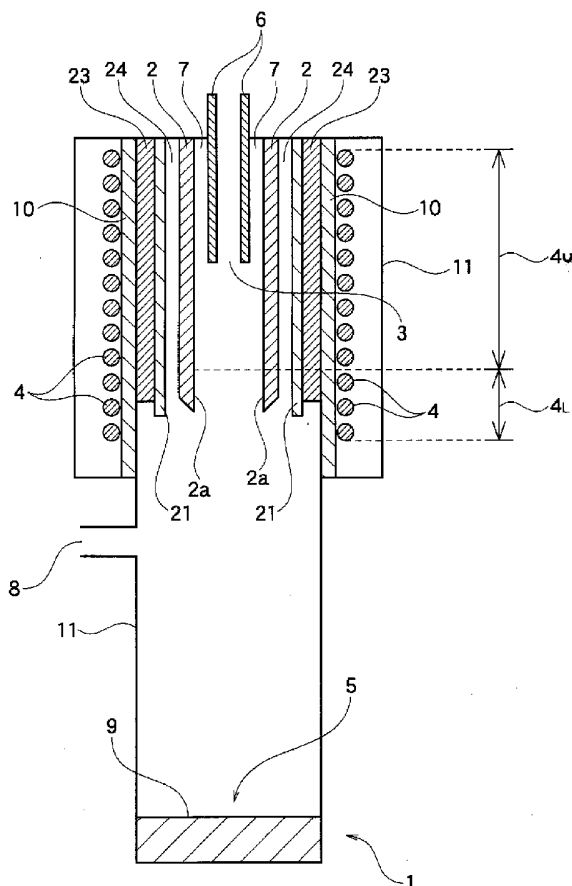
(74) 代理人: 鈴木 俊一郎 (SUZUKI, Shunichiro); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目 1 3 番 6 号 五反田山崎ビル 6 階 鈴木国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,

[続葉有]

(54) Title: SILICON MANUFACTURING APPARATUS

(54) 発明の名称: シリコン製造装置



(57) Abstract: A polycrystalline silicon manufacturing apparatus capable of preventing molten silicon from being solidified at the lower end of a reaction tube due to the lowering of temperature at the lower end when the inner surface of the reaction tube is heated to a temperature equal to or higher than the melting point of silicon and deposited silicon is fallen to a lower collection part for collection. The apparatus comprises an infrared ray radiating device heating the outer periphery of the lower end part (2a) of the reaction tube (2) by infrared ray or a temperature lowering prevention means such as a lower end side coil (4L) formed of a coil near the lower end of a high-frequency heating coil (4) and having a heating strength increased more than that of a coil (4U) located above near the lower end part. When the reaction tube (2) is heated by the high-frequency heating coil (4), the temperature of the lower end part (2a) can be prevented from being lowered by the temperature lowering prevention means.

(57) 要約: 多結晶シリコンの製造装置において、反応管の内面をシリコンの融点以上の温度にして析出シリコンを下方の回収部へ落下させて回収する際に、反応管の下端部での温度低下に伴う該下端部での溶融シリコンの固化を防止することができるシリコン製造装置を提供する。反応管2の下端部2aの外周を赤外線で加熱する赤外線放射装置、あるいは高周波加熱コイル4における下端部近傍のコイルで構成された、該下端部近傍よりも上方のコイル4Uに比して加熱強度を高めた下端側コイル4Lなどの温度低下防止手段を設け、この温度低下防止手段により、高周波加熱コイル4で反応管2を加熱した際における下端部2aの温度低下を防止するようにした。



SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,
UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN,
TD, TG).

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF,

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

シリコン製造装置

技術分野

- [0001] 本発明は、多結晶シリコンを製造するためのシリコン製造装置に関する。さらに詳しくは、本発明は、高周波加熱コイルで加熱された反応管へ原料ガスを供給して、反応管の内面にシリコンを析出させ、反応管の下端部を含む少なくとも一部をシリコンの融点以上に加熱した状態で、析出したシリコンを反応管の下方に設けた回収部へ落下させて回収するシリコンの製造装置に関する。

背景技術

- [0002] 従来から、半導体、太陽光発電用電池などの原料として使用されるシリコンを製造するための種々の方法が知られており、これらのうちで、幾つかの方法は既に工業的に実施されている。

例えば、その一つはジーマンス法と呼ばれる方法であり、この方法では、通電によりシリコンの析出温度に加熱したシリコン棒をベルジャーの内部に配置し、このシリコン棒にトリクロロシラン(SiHCl_3)やモノシラン(SiH_4)を、水素等の還元性ガスとともに接触させてシリコンを析出させる。

この方法では高純度なシリコンが得られ、最も一般的な方法として工業的に実施されているが、バッチ式でシリコンの析出を行うため、種となるシリコン棒の設置、シリコン棒の通電加熱、析出、冷却、取り出し、ベルジャーの洗浄などの一連の過程を、バッチごとに繰り返す必要があり、煩雑な操作を要する。

- [0003] 一方、連続的に多結晶シリコンを製造可能な方法として、図12に示した装置による方法が提案されている(例えば特許文献1、2を参照)。このシリコン製造装置100は、密閉容器111内に、反応管102と、クロロシラン類と水素とを供給するガス供給口103と、反応管102の外周に設置した高周波加熱コイル104とを備えている。

反応管102は、その外周の高周波加熱コイル104からの電磁波で加熱され、反応管102の内面はシリコンの融点以上の温度か、あるいはこれ未満のシリコンが析出可能な温度に加熱される。

そして、この加熱された反応管102の内面へ、ガス供給口103から供給されたクロロシラン類を接触させてシリコンを析出させる。

反応管102の内面をシリコンの融点以上の温度にしてシリコン析出を行う場合(第1の方法)では、熔融状態で析出したシリコン融液を、反応管102の下端部102aの開口から連続的に落下させて、落下方向に設置されたシリコン回収部105で回収する。

[0004] また、反応管102の内面をシリコンが析出可能な融点未満の温度にしてシリコン析出を行う場合(第2の方法)では、反応管102の内面に一度シリコンを固体として析出させた後、この内面をシリコンの融点以上に加熱して、析出物の一部または全部を熔融させて落下させ、落下方向に設置されたシリコン回収部105で回収する。

なお、反応装置100内における、例えば反応管102とガス供給管106との間隙107などの、シリコンの析出を防止する必要がある領域には水素等のシールガスを供給して満たしている。また、反応管102での反応後の排ガスは、密閉容器111に設けられたガス排出管108から外部へ排出される。110は、高周波加熱コイル104を反応ガス雰囲気から遮断するための、石英等で形成される隔壁である。

特許文献1:特開2003-2627号公報

特許文献2:特開2002-29726号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、反応管102の内面の、シリコン析出を行う領域を高周波加熱コイル104でシリコンの融点以上に昇温しようとしても、反応管102の下端部102aでは放熱が特に大きいために、その上方の管面温度に比してその温度が低下してしまう。

このため、上記した反応管102の内面をシリコンの融点以上の温度にしてシリコン析出を行う第1の方法、反応管102の内面をシリコンが析出可能な融点未満の温度にしてシリコン析出を行う第2方法のいずれにおいても、反応管102の内面をシリコンの融点以上の温度にして、析出したシリコンを熔融、落下させて下方に設置したシリコン回収部105で回収しようとする際に、例えば反応管102の内面を下方へ流れて下端部102aへ到達した熔融シリコンなどが冷やされて、その一部が固化してしまう。

このように下端部102aで溶融シリコンが固化してしまうと、下端部102aの先端から下方へつらら状にシリコン塊が延長形成されるため、シリコン回収部105への適切な落下による回収が阻害されてしまう。

- [0006] 一方、この下端部102aにおける溶融シリコンの固化を防止するために、高周波加熱コイル104で下端部102aを充分に加熱しようとする、これに伴って反応管102の下端部102aより上方の部分が昇温され過ぎてしまい、シリコン微粉やシラン類オリゴマー等の副生物が発生し易くなり、目的とするシリコンの収率低下やエネルギーの損失が大きくなる。

また、反応管102の外面に保温部材を巻装して反応管102からの放熱を抑制することもあるが、現状の保温部材では、下端部102aの保温を充分に確保することは困難である。さらに、下端部102aの表面を、管内面側から開口を出て管外面側まで伝ってくる溶融シリコンが保温部材の下端部近傍と接触すると、保温部材が劣化してしまう等の問題がある。

- [0007] 本発明は、上記したような従来技術における問題点を解決するためになされたものであり、その目的は、反応管の内面をシリコンの融点以上の温度にして析出シリコンを下方の回収部へ落下させて回収する際に、反応管の下端部における温度低下に伴う該下端部での溶融シリコンの固化を防止することができるシリコン製造装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

- [0008] 本発明のシリコン製造装置は、炭素材料を基材とする反応管と、
前記反応管の上部から、クロロシラン類と水素とを供給するガス供給口と、
前記反応管の外周側に設けた高周波加熱コイルとを備え、
前記高周波加熱コイルにより前記反応管の下端部を含む少なくとも一部をシリコンの融点以上に加熱可能とした多結晶シリコンの製造装置であって、
前記高周波加熱コイルによる加熱時における前記反応管の下端部の温度低下を防止する温度低下防止手段を備えることを特徴とする。

上記の発明では、温度低下防止手段により、高周波加熱コイルで反応管を加熱した際における反応管の下端部の温度低下を防止している。従って、反応管の内面を

シリコンの融点以上の温度にして析出シリコンを下方の回収部へ落下させて回収する際に、反応管の下端部における溶融シリコンの固化を防止することができる。

[0009] 本発明の好ましい態様では、前記温度低下防止手段は、前記反応管の下端部の外周を赤外線で加熱する赤外線放射装置である。

赤外線放射装置により反応管の下端部を赤外線で加熱することによって、反応管の内面をシリコンの融点以上の温度にして析出シリコンを下方の回収部へ落下させて回収する際に、反応管の下端部における温度低下が防止され、反応管の下端部における溶融シリコンの固化を防止することができる。

前記赤外線放射装置は、前記反応管の下端部の外周側に該下端部から離間して周設された、炭素材料を基材とする赤外線放射部材と、

前記赤外線放射部材の外周側に、該赤外線放射部材を加熱するように配置された前記高周波加熱コイルとから構成することができる。

[0010] このように、反応管の下端部の外周側に赤外線放射部材を設置し、反応管のシリコン析出領域を加熱する高周波加熱コイルでこの赤外線放射部材を同時に加熱することにより、反応管の下端部は赤外線放射部材からの赤外線で十分に加熱され、反応管の下端部における温度低下を防止することができる。

本発明の他の好ましい態様では、前記温度低下防止手段は、前記高周波加熱コイルにおける下端部近傍のコイルで構成された、該下端部近傍よりも上方のコイルに比して加熱強度を高めた下端側コイルである。

下端側コイルにより反応管の下端部を選択的に強く加熱することによって、反応管の内面をシリコンの融点以上の温度にして析出シリコンを下方の回収部へ落下させて回収する際に、反応管の下端部における温度低下が防止され、反応管の下端部における溶融シリコンの固化を防止することができる。

[0011] 前記下端側コイルは、その上方のコイルのコイルピッチに比して短いコイルピッチで形成されていることが好ましい。

このように、間隔を狭めて巻回したコイルで下端側コイルを構成することにより、反応管の下端部に対する加熱強度が選択的に強めることができ、反応管の下端部における温度低下を防止することができる。

前記下端側コイルは、拡径方向へ多重に巻回された複数のコイルからなることが好ましい。

このように、多重に巻回された複数のコイルで下端側コイルを構成することにより、多重に巻回された各コイルからの高周波で反応管の下端部が加熱されるので、反応管の下端部に対する加熱強度が選択的に強められ、反応管の下端部における温度低下を防止することができる。

[0012] 前記下端側コイルは、その上方のコイルとは独立に高周波電力が制御されるコイルからなることが好ましい。

このように、下端側コイルをその上方のコイルから分割し、例えば上方のコイルとは別の電源で下端側コイルに高周波電力を供給するか、あるいは、上方のコイルと同一の電源を用いてタップ、サイリスタ等により上方のコイルとは別系統で下端側コイルに高周波電力を供給し、反応管の下端部に対する加熱強度を選択的に強めるように下端側コイルへの高周波電力を制御することによって、反応管の下端部における温度低下を防止することができる。

本発明において、前記反応管の外周側には、該反応管からの放熱を抑制する保温部材を設置してもよい。

[0013] 本発明において、前記反応管の下端部は、その形状等にもよるが、例えば、該反応管の最下端と接する水平面と該反応管の中心軸との交点から、該水平面と成す角度が45度となる方向に向かう直線と、

前記反応管の開口形状を均等に2分割する直線のうち最短となる直線上から該反応管の内周面に沿って軸方向に向かう垂線との交点を上限とする範囲である。

発明の効果

[0014] 本発明のシリコン製造装置によれば、反応管の内面をシリコンの融点以上の温度にして析出シリコンを下方の回収部へ落下させて回収する際に、反応管の下端部における温度低下に伴う該下端部での熔融シリコンの固化を防止することができる。

発明を実施するための最良の形態

[0015] 以下、図面を参照しながら本発明の実施形態について説明する。図1は、本発明のシリコン製造装置の実施形態を示した断面図である。なお、前述した従来のシリコ

ン製造装置の部材等と対応する部分は符号100を略して示す。

図示したように、このシリコン製造装置1は、密閉容器11内に、反応管2と、クロロシラン類と水素とを供給するガス供給口3と、反応管2の外周に設けられた高周波加熱コイル4と、反応管2の外周面に近接して、その上部側から下端部2a近傍に渡り設けられたカーボン管21とを備えている。

反応に使用するクロロシラン類としては、例えば、トリクロロシラン(SiHCl_3)、四塩化ケイ素(SiCl_4)、ジクロロシラン(SiH_2Cl_2)、モノクロロシラン(SiH_3Cl)、あるいはヘキサクロロジシラン(Si_2Cl_6)などのクロロジシラン類、オクタクロロトリシラン(Si_3Cl_8)などのクロロトリシラン類を挙げることができる。これらのクロロシラン類は、単独で用いてもよく、または2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0016] 反応管2は、円筒状等の筒状に形成され、その下端部2aの開口から下方へ開放されている。その形成材料としては、高周波による加熱が可能で、シリコンの融点で耐性がある、グラファイトなどの炭素材料が好適に使用される。

析出するシリコンと直接に接触する管内面を、シリコンの融液に対して比較的耐性の高い窒化珪素、炭化珪素、熱分解炭素などで被覆することが、反応管2の耐久性を向上し、シリコン製品の純度を向上する点から好ましい。

反応管2の内部には、その上部に設置されたガス供給管6のガス供給口3から、クロロシラン類と水素とが同時にもしくは別々に供給される。このガス供給管6は、管の熱劣化を防止し、管内でクロロシラン類が分解することを防止するために、ガス供給管6を冷却するための冷却手段を備えることが望ましい。ガス供給管6の冷却は、例えば、水、熱媒油等の冷媒液体を供給する流路をガス供給管6に設けて冷却する液体ジャケット方式、ガス供給管6の外周に1または2以上のノズルを略同心円状に設置して、ガス供給管6から反応ガスを供給するとともに、ガス供給管6およびその外周の各ノズル間の間隙に冷却ガスを供給(パージ)してガスによる冷却でガス供給管6を冷却する空冷ジャケット方式などにより行われる。

[0017] 反応管2の上部における、反応管2の内面とガス供給管6の外面とが横方向で重なる領域は、低温領域であり、析出した固体状シリコンを融点以上に加熱して溶融させることが困難であるため、この反応管2とガス供給管6との間隙7には水素ガス、アル

ゴンガス等のシールガスを供給して、間隙7をシールガス雰囲気で満たし、これによりクロロシラン類と水素との混合ガスが間隙7へ侵入することを防止している。この他、シリコンと反応して原料ガスを生成する、塩化水素等の反応試剤を単独で、またはシールガスとともに間隙7へ供給してもよい。

この他、製造装置1内における、例えば反応管2とカーボン管21との間隙24などの、シリコンの析出を防止する必要がある領域には、同様にシールガス等を供給して満たしている。

- [0018] 反応管2は、その外周の高周波加熱コイル4からの電磁波(高周波)で加熱され、反応管2の内面はシリコンの融点以上の温度か、あるいはこれ未満のシリコンが析出可能な温度に加熱される。この加熱領域は通常、下端部2aから管方向へ、密閉容器1内における反応管2の全長に対して30〜90%の長さの領域である。

反応管2の内面をシリコンの融点以上の温度にしてシリコン析出を行う方法(第1の方法)では、反応管2の内面の温度をシリコンの融点(概ね1410〜1430℃)以上としてシリコンを溶融状態で析出させる。

反応管2の内面をシリコンが析出可能な融点未満の温度にしてシリコンを析出させる方法(第2の方法)では、反応管2内面の温度を、例えば950℃以上、好ましくは1200℃以上、さらに好ましくは1300℃以上としてシリコンを析出させる。

- [0019] 高周波加熱コイル4は、図示しない電源からコイル4へ通電することにより電磁波を発生して反応管2を加熱する。この電磁波の周波数は、反応管2等の、加熱対象の材質もしくは形状に応じて適切な値に設定され、例えば、数十Hz〜数十GHz程度に設定される。

反応管2の内面に析出したシリコンは、反応管2の下端部2aの開口から落下させて、落下方向に設置されたシリコン回収部5で回収する。

シリコン回収部5における冷却回収室の形成材料としては、金属、セラミックス、ガラス等が使用できるが、工業装置としての頑丈さと、高純度のシリコンを回収することを両立するために、金属製の冷却回収室の内面に、シリコン、テフロン(登録商標)、石英ガラス、タンタル、タングステン、モリブデン等でライニングを施すことが好ましい。冷却回収室の底部にはシリコン粒子を敷いてもよい。また、冷却回収室から固化したシ

リコンを連続的あるいは断続的に抜き出す取出口を設けてもよい。冷却回収室に達したシリコンは、上記の材料と接することにより冷却されるが、冷媒液体が通液される冷却ジャケット、冷却ガスが供給される冷却ガス供給管などを設置して冷却するようにしてもよい。

[0020] 前述した第1の方法では、熔融状態で析出したシリコン融液を、反応管2の下端部2aの開口から連続的に落下させて、落下方向に設置されたシリコン回収部5で回収する。この場合、析出したシリコン融液は、反応管2の内面に沿って下方へ流れ、下端部2aから液滴として自然落下し、落下中もしくは落下後に固化する。

また、前述した第2の方法では、反応管2の内面に一度シリコンを固体として析出させた後、この内面をシリコンの融点以上となるまで加熱、昇温して、析出物の一部または全部を熔融させて落下させ、落下方向に設置されたシリコン回収部5で回収する。

この場合、シリコンを反応管2の内面に析出させる工程と、この内面をシリコンの融点以上となるまで加熱、昇温して、析出物を落下させてシリコン回収部5で回収する工程とが繰り返される。回収部5から装置外部へシリコン9を取り出す際には、例えば、反応管2を含む装置上部の空間とその下側の回収部5との間に、板状体を横方向へスライドさせてこれらの空間を仕切り、これにより装置上部の空間では反応ガス雰囲気を保って析出反応を継続させながら、回収部5で回収したシリコン9を装置外部へ取り出すことができる。また、反応管2の内面をシリコンの融点以上まで昇温するための加熱は、高周波加熱コイル4の電源出力を調整して行うことができるが、この他、シリコン製造装置1の内部で流れるガスの流量を減少させることで、この加熱を行うこともできる。

[0021] シリコンの製造条件は、特に限定されないが、クロロシラン類からシリコンへの転化率が20%以上、好ましくは30%以上となる条件下でシリコンを生成させるように、クロロシラン類と水素との供給比率、供給量、滞在時間等を決定することが望ましい。反応容器の大きさに対して経済的なシリコンの製造速度を得るためには、供給ガス中のクロロシラン類のモル分率は、0.1〜99.9モル%とすることが好ましく、より好ましくは5〜50モル%である。また、反応圧力は高い方が装置を小型化できるメリットがあるが

、0～1MPaG程度が工業的に実施し易い。

ガスの滞在時間については、一定容量の反応容器に対して圧力と温度の条件によって変化するが、反応条件下において、反応管2内でのガスの平均的な滞在時間を0.001～60秒、好ましくは0.01～10秒に設定すれば、十分に経済的なクロロシラン類の転化率を得ることが可能である。

[0022] 反応管2の内面をシリコンの融点以上として、反応管2の下端部2aからシリコンを落させてシリコン回収部5で回収する際に、高周波加熱コイル4で反応管2を加熱しても、その下端部2aでは放熱が特に大きいために十分に昇温することができず、その上方の管内面に比して温度が低下してしまう。このため、この下端部2aで溶融シリコンが冷やされて、その一部が固化してしまう。

このように下端部2aで溶融シリコンが固化してしまうと、下端部2aの先端から下方へつらら状にシリコン塊が延長形成されるため、シリコン回収部5への適切な落下による回収が阻害されてしまう。

そこで本発明では、反応管2をシリコンの融点以上に加熱した際に、その下端部2aの温度低下を防止する温度低下防止手段を設けている。この温度低下防止手段は、具体的には、反応管2の下端部2aを、下端部2aがシリコンの融点以上、好ましくは1430℃～1500℃となるように下端部2aを加熱する装置、部材等である。下端部2aを温度低下防止手段により過剰に昇温するのは、シリコン微粉が発生する等のため好ましくない。

[0023] この温度低下防止手段で加熱すべき下端部2aの範囲は、その形状等にもよるが、次のとおりである。即ち図9(a)に示したように、反応管2の最下端と接する水平面(開口面)71と反応管2の中心軸との交点73から、開口面71と成す角度が45度となる方向に向かう直線と、開口面71を均等に2分割する直線のうち最短となる直線上(例えば開口面71が楕円形状である場合には、その短軸上)から反応管2の内周面に沿って軸方向に向かう垂線との交点74を通る水平面72を上限とする範囲が、上記の温度低下防止手段で加熱すべき下端部2aとなる。反応管2の開口径が大きくなるほど下端部2aからの放熱が大きくなり、加熱すべき下端部2aの高さ範囲も長くなる。

反応管2の開口形状は、円状の他、楕円状などの他の形状であってもよい。この開

口近傍における下端部2aの形状は、上方から最下端まで均一な厚みである場合の他、シリコン粒子の粒径が小さく且つ均一となるようにシリコン融液の液滴を調整するために、最下端へ向かって外周部の径が徐々に小さくなるように外周部を斜方に切り出した形状、あるいは開口周縁を波状とした形状にしてもよい。

- [0024] また、反応管2の開口面は水平面からやや傾いていてもよい。この場合図9(b)に示したように、上記の温度低下防止手段で加熱すべき下端部2aの範囲は、反応管2の開口面71と反応管2の中心軸との交点73から、開口面71と成す角度が45度となる方向に向かう直線と、開口面71を均等に2分割する直線のうち最短となる直線上から反応管2の内周面に沿って軸方向に向かう垂線との交点74a、74bについて、これらの交点74aおよび74bからの距離が等しく且つ開口面71と平行な平行面72を上限とする範囲が、上記の温度低下防止手段で加熱すべき下端部2aとなる。

反応管2の下端部2aの形状が複雑な場合であっても、加熱すべき下端部2aの高さ範囲は概ね図9(a)、(b)に基づいて規定される。

また、上記の温度低下防止手段で加熱する範囲は、図10に示したように、下端部2aの領域(反応管2の最下端から管軸方向への距離 r までの長さ範囲)が必須であり、必要に応じて、この距離 r の4倍までの長さ範囲($4r$)を上記の温度低下防止手段により加熱することが望ましい。上記の温度低下防止手段により反応管2の距離 $4r$ よりも上方の領域まで加熱すると、シリコン微粉が発生することがある。

- [0025] また本発明の装置では、反応管2のシリコンを析出させる領域であるシリコン析出部の長さ L (図11を参照)と、反応管2の最下端における内径 D との比 L/D は2以上、好ましくは3以上である。

本発明の装置には、反応管2の外周に、加熱時に反応管2からの放熱を抑制する保温部材23を設置することが好ましいが、保温部材23は必須ではなく、場合によっては保温部材23は無くてもよい。なお、保温部材23で反応管2の下端部2aの最下端まで覆った場合でも、下端部2aの内面からの熱放射により下端部2aの温度低下が起こり、保温部材23が反応管2の下端部2aまで覆っていない場合では、下端部2aの温度低下はより大きくなる。

図1の実施形態では、この下端部2aでの温度低下を防止するために、下端部2aの

近傍でその外周を覆うカーボン管21を設けている。このカーボン管21は、グラファイトなどの、高周波加熱コイル4からの高周波で加熱可能である炭素材料を基材として形成される。

[0026] 反応管2の下端部2aは、高周波加熱コイル4で直接に加熱されるとともに、高周波加熱コイル4で加熱されたカーボン管21から発する赤外線で同時に加熱される。

このように下端部2aをカーボン管21から発する赤外線ですらに加熱することにより、下端部2aは充分に加熱されてシリコンの融点以上に昇温されるため、熔融シリコンがこの部分で冷やされてシリコン塊を生成することがなく、熔融シリコンは、反応管2の内面を伝って下端部2aから円滑に落下してシリコン回収部5で回収される。

本実施形態では、カーボン管21を、反応管2と、その外周に設置したカーボンファイバー、セラミック焼結体等で形成される保温部材23とを仕切るように設置して、カーボン管21の外面に保温部材23を巻装している。そして、反応管2とカーボン管21との間隙24に水素等のシールガスを供給して、この領域におけるシリコンの析出を防止している。この場合、図1のカーボン管21のように反応管2と保温部材23とを仕切る管状部材として、その下端部を含む一部を炭素材料で形成して、その上部をセラミックス等の、高周波加熱コイル4からの高周波で加熱されない材料で形成したものを用いてもよい。すなわち、反応管2の下端部2aの近傍において管状部材が炭素材料で形成されていれば下端部2aへの赤外加熱を行うことができ、管状部材のそれ以外の部分は炭素材料以外の材料で形成されていてもよい。

[0027] なお、例えば図2に示したように、反応管2の外面に保温部材23を巻装して、カーボン管21を反応管2の下端部2a近傍にのみ設置するようにしてもよい。また、カーボン管21の径方向の厚みは、高周波加熱コイル4からの高周波を反応管2の下端部2aへ効率よく到達させるためには、周波数による浸透深さを考慮し、強度等を損なわない範囲で薄くすることが望ましい。

図3および図4は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。図3の実施形態では、反応管2の下端部2a近傍にリング状発熱体31を配置して、このリング状発熱体31に図示しない電源から電流を供給することにより通電加熱して、これによりリング状発熱体31から下端部2aへ赤外

線を照射して下端部2aを加熱している。

[0028] 図4の実施形態では、反応管2の下端部2a近傍に石英ガラスで形成した棒状体41を複数配置して、電球42からの赤外光を、棒状体41の基端部41aから棒状体41の内部へ導入し、先端部41bまで導光している。そして、この先端部41bから下端部2aへ赤外光をスポット照射して下端部2aを加熱している。この石英ガラスで形成した棒状体41の先端部41bは、発せられる赤外光を収束させるためにはレンズ状に形成することが望ましい。

上記した各実施形態では、赤外線により反応管2の下端部2aを加熱してその温度低下を防止するようにしたが、この場合、赤外線を下端部2aの全周に渡り照射して加熱することが望ましい。

図5は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。本実施形態では、高周波加熱コイル4の、反応管2の下端部2a近傍領域のコイル(下端部コイル4L)が、その上方のコイル4UのコイルピッチP2よりも短いコイルピッチP1で形成されている(下端部コイル4Lおよびコイル4Uの全体配置については図1を参照)。

[0029] このように下端部コイル4Lの巻き密度を高くしているので、高周波加熱コイル4で反応管2を加熱した際に、反応管2の下端部2aは巻き密度が高い下端部コイル4Lから選択的に強く加熱され、下端部2aにおける温度低下が防止される。

高周波加熱コイル4へ電力を供給する電源としては、単一の電源が設けられている。1本のコイルの巻き密度を変化させて下端部コイル4Lとその上方のコイル4Uとを形成した高周波加熱コイル4の一端から他端へ、この電源から通電した際に、コイルピッチの短い下端部コイル4Lからは、その上方のコイル4Uからの高周波よりも高強度の高周波が発せられ、反応管2の下端部2aが選択的に強く加熱される。このように、反応管2の下端部2aとその上方とを同一の電源で加熱できるので、比較的簡易な装置構成とすることができる。

[0030] 下端部コイル4LのコイルピッチP1と、その上方のコイル4UのコイルピッチP2は、反応管2の下端部2aでのシリコン塊の生成を防止する点から、装置構成にもよるが、コイルピッチの比率 $P2/P1$ が3以上であることが望ましい。

図6は、図5の実施形態の変形例を示した断面図である。図示したように、カーボン管21が反応管2の下端部2a近傍に設けられている。このカーボン管21は、巻き密度の高い下端部コイル4Lにより加熱され、加熱されたカーボン管21から放射された赤外線により反応管2の下端部2aが加熱される。

反応管2の下端部2aは、巻き密度の高い下端部コイル4Lにより選択的に強く加熱されるとともに、この下端部コイル4Lからの高周波により加熱されたカーボン管21からの赤外線でさらに加熱されるので、反応管2の下端部2aにおける温度低下を有効に防止することができる。

[0031] 図7は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。本実施形態では、高周波加熱コイル4の、反応管2の下端部2a近傍領域のコイル(下端部コイル4L)が、拡張方向へ2重に巻回された2つのコイルから構成されている。

このように下端部コイル4Lを2重に巻回しているので、高周波加熱コイル4で反応管2を加熱した際に、反応管2の下端部2aは、下端部コイル4Lにおける内側コイルと外側コイルの両方からの高周波により加熱され、その上方のコイル4Uからの加熱よりも強く加熱される。したがって、反応管2の下端部2aは選択的に強く加熱され、下端部2aにおける温度低下が防止される。

下端部コイル4Lは、2重巻きの他、拡張方向へ3重巻き以上に巻回した多重巻きコイルであってもよい。

[0032] 高周波加熱コイル4へ電力を供給する電源としては、下端部コイル4Lを1本のコイルを多重に巻回して形成する場合には単一の電源を用いることができる。

図8は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。本実施形態では、高周波加熱コイル4が、それぞれ別系統で電力が供給される分割された2つのコイルで構成されている。

一方のコイル4Uは、反応管2の下端部2a近傍よりも上方の析出領域全体の外周側に設置され、他方の下端部コイル4Lは反応管2の下端部2a近傍領域に設置されている。

これらのコイル4Uおよび下端部コイル4Lは、別系統の独立した制御系により高周

波電力が制御されており、反応管2の下端部2aよりも上方の析出領域はコイル4Uにより加熱され、下端部2aはコイル4Lにより加熱される。

- [0033] シリコンを溶融させる際には、下端部コイル4Lによる反応管2の下端部2aに対する加熱強度が、その上方のコイル4Lによる反応管2に対する加熱強度よりも強くなるように、各制御系による高周波電力を制御する。これにより、反応管2の下端部2aは、下端部コイル4Lによる強い高周波によって選択的に強く加熱され、下端部2aにおける温度低下が防止される。

コイル4Uへの高周波電力と下端部コイル4Lへの高周波電力とを別系統で独立に制御する方法としては、コイル4Uへ電力を供給する電源と、下端部コイル4Lへ電力を供給する電源とを別の電源として、各電源から独立に各コイルへ高周波電力を供給する方法が挙げられる。

あるいは、コイル4Uへ電力を供給する電源と、下端部コイル4Lへ電力を供給する電源とを同一電源として、タップ、サイリスタ等により電力供給系統を独立させ、これらのコイルへ別系統で高周波電力を供給するようにしてもよい。

- [0034] 下端部コイル4Lへの高周波電力の供給は、反応管2の下端部2aの温度を計測し、フィードバック制御するか、あるいは運転状態を目視で確認しながら調整する。

以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[実施例1]

材質がカーボンであり、円筒形で寸法が外径100mm、内径70mm、長さ1000mmである反応管を多結晶シリコン製造装置に装着した。反応管の下端部の外周側には、図2に示したようにカーボン管(21)を設置し、高周波加熱コイルで加熱されたこのカーボン管からの赤外線で反応管の下端部を加熱するようにした。

トリクロロシラン20kg/Hと水素40Nm³/Hとの混合ガスを反応管内部に流通させ、均一なコイルピッチで巻回された高周波加熱コイルにより加熱して反応管の下端部および下端部以外の温度を1450℃以上に昇温させ、多結晶シリコンを溶融状態で析出させた。100時間の連続反応を行った後、反応管の下端部の状態を観察したが、反応管の下端部においてシリコン塊は固化していなかった。

[実施例2]

材質がカーボンであり、円筒形で寸法が外径100mm、内径70mm、長さ1000mmである反応管を多結晶シリコン製造装置に装着した。このシリコン製造装置の高周波加熱コイルには、図5に示したように下端側コイル(4L)のピッチが短く巻き密度を高くしたものを用いた。下端側コイル(4L)のピッチP1を10mmとし、その上方のコイル(4U)のピッチP2を30mmとして、これらの連続して巻回されたコイルへ同一の電源から高周波電力を供給した。

- [0035] トリクロロシラン20kg/Hと水素40Nm³/Hとの混合ガスを反応管内部に流通させ、上記の高周波加熱コイルにより加熱して反応管の下端部および下端部以外の温度を1450℃以上に昇温させ、多結晶シリコンを熔融状態で析出させた。100時間の連続反応を行った後、反応管の下端部の状態を観察したが、反応管の下端部においてシリコン塊は固化していなかった。

[実施例3]

材質がカーボンであり、円筒形で寸法が外径100mm、内径70mm、長さ1000mmである反応管を多結晶シリコン製造装置に装着した。このシリコン製造装置の高周波加熱コイルには、図7に示したように下端側コイル(4L)を拡張方向に2重に巻回したものをを用いた。

- [0036] トリクロロシラン20kg/Hと水素40Nm³/Hとの混合ガスを反応管内部に流通させ、上記の高周波加熱コイルにより加熱して反応管の下端部および下端部以外の温度を1450℃以上に昇温させ、多結晶シリコンを熔融状態で析出させた。100時間の連続反応を行った後、反応管の下端部の状態を観察したが、反応管の下端部においてシリコン塊は固化していなかった。

[実施例4]

材質がカーボンであり、円筒形で寸法が外径100mm、内径70mm、長さ1000mmである反応管を多結晶シリコン製造装置に装着した。このシリコン製造装置の高周波加熱コイルは、図8に示したように、下端側コイル(4L)への高周波電力と、その上方のコイル(4U)への高周波電力とを別系統で独立に制御するようにした。すなわち、下端側コイル(4L)の電源と、その上方のコイル(4U)の電源をそれぞれ別の電源

として、これらの分割された各コイルへの電力供給を独立に制御するようにした。

[0037] トリクロロシラン20kg/Hと水素40Nm³/Hとの混合ガスを反応管内部に流通させ、上記の高周波加熱コイルにより加熱して反応管の下端部および下端部以外の温度を1450℃以上に昇温させ、多結晶シリコンを熔融状態で析出させた。100時間の連続反応を行った後、反応管の下端部の状態を観察したが、反応管の下端部においてシリコン塊は固化していなかった。

[比較例1]

カーボン管(21)を設置しなかった以外は、実施例1と同条件にて連続反応を行ったが、反応管の下端部にシリコン塊が固化し、つらら状に延長形成した。このシリコン塊により、反応継続が不可能となった。

図面の簡単な説明

[0038] [図1]図1は、本発明のシリコン製造装置の実施形態を示した断面図である。

[図2]図2は、図1の実施形態の変形例を示した反応管下端部周辺の断面図である。

[図3]図3は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。

[図4]図4は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。

[図5]図5は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。

[図6]図6は、図5の実施形態の変形例を示した反応管下端部周辺の断面図である。

[図7]図7は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。

[図8]図8は、本発明のシリコン製造装置の他の実施形態における反応管下端部周辺を示した断面図である。

[図9]図9は、温度低下防止手段で加熱すべき反応管下端部の範囲を説明する図である。

[図10]図10は、温度低下防止手段で加熱する範囲を説明する図である。

[図11]図11は、本発明の装置における、反応管のシリコン析出部の長さLと、反応管

の最下端における内径Dとの比 L/D を説明する図である。

[図12]図12は、従来のシリコン製造装置を示した断面図である。

符号の説明

- [0039]
- | | |
|-----|----------|
| 1 | シリコン製造装置 |
| 2 | 反応管 |
| 2a | 下端部 |
| 3 | ガス供給口 |
| 4 | 高周波加熱コイル |
| 4L | 下端側コイル |
| 4U | 上方のコイル |
| 5 | 回収部 |
| 6 | ガス供給管 |
| 7 | 間隙 |
| 8 | ガス排出口 |
| 9 | 回収シリコン |
| 10 | 隔壁 |
| 11 | 密閉容器 |
| 21 | カーボン管 |
| 23 | 保温部材 |
| 24 | 間隙 |
| 31 | リング状発熱体 |
| 41 | 棒状体 |
| 41a | 基端部 |
| 41b | 先端部 |
| 42 | 電球 |
| 51 | 下端部 |
| 52 | 基部 |
| 61 | 下端部加熱コイル |

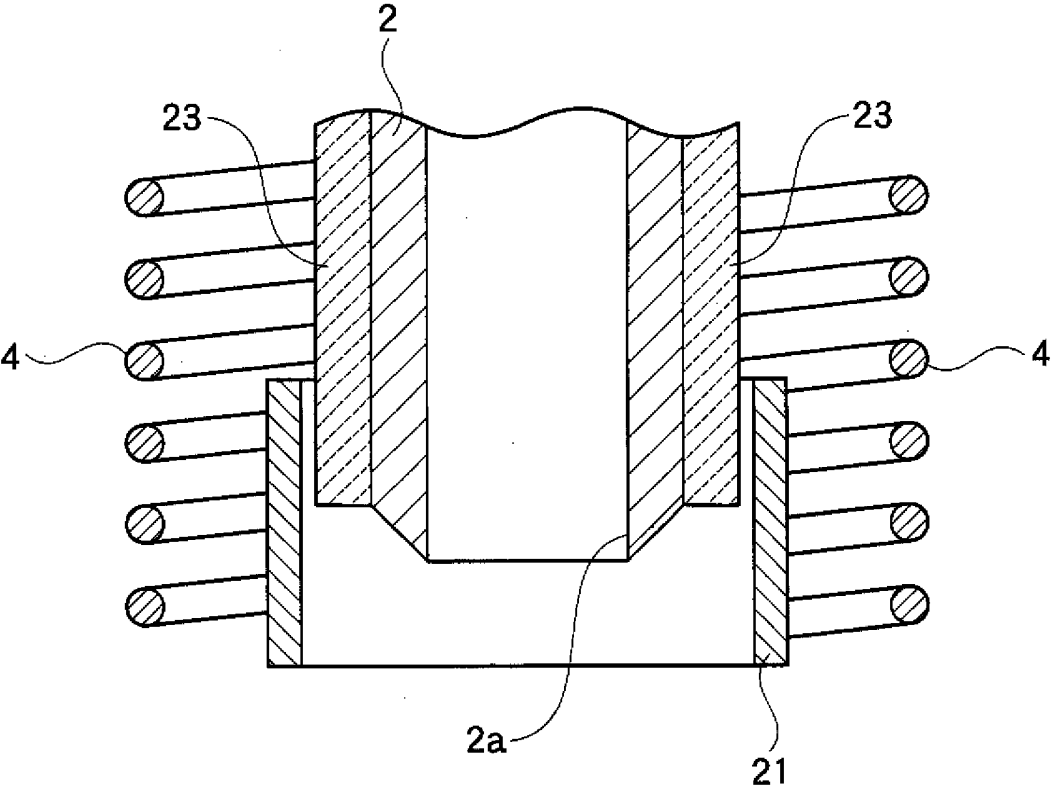
- 71 開口面
- 72 水平面(平行面)
- 73 交点
- 74 交点
- 74a 交点
- 74b 交点
- 100 シリコン製造装置
- 102 反応管
- 102a 下端部
- 103 ガス供給口
- 104 高周波加熱コイル
- 105 回収部
- 106 ガス供給管
- 107 間隙
- 108 ガス排出口
- 109 回収シリコン
- 110 隔壁
- 111 密閉容器
- P1 コイルピッチ
- P2 コイルピッチ
- L 析出部長さ
- D 反応管下端の内径

請求の範囲

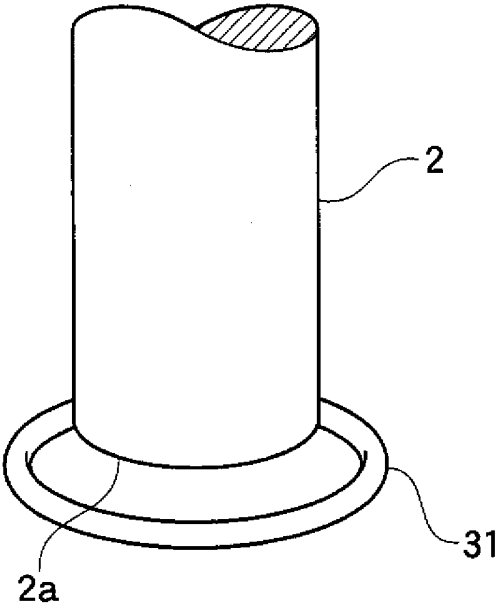
- [1] 炭素材料を基材とする反応管と、
前記反応管の上部から、クロロシラン類と水素とを供給するガス供給口と、
前記反応管の外周側に設けた高周波加熱コイルとを備え、
前記高周波加熱コイルにより前記反応管の下端部を含む少なくとも一部をシリコンの融点以上に加熱可能とした多結晶シリコンの製造装置であって、
前記高周波加熱コイルによる加熱時における前記反応管の下端部の温度低下を防止する温度低下防止手段を備えることを特徴とするシリコン製造装置。
- [2] 前記温度低下防止手段が、前記反応管の下端部の外周を赤外線で加熱する赤外線放射装置であることを特徴とする請求項1に記載のシリコン製造装置。
- [3] 前記赤外線放射装置が、前記反応管の下端部の外周側に該下端部から離間して周設された、炭素材料を基材とする赤外線放射部材と、
前記赤外線放射部材の外周側に、該赤外線放射部材を加熱するように配置された前記高周波加熱コイルとを備えることを特徴とする請求項2に記載のシリコン製造装置。
- [4] 前記温度低下防止手段が、前記高周波加熱コイルにおける下端部近傍のコイルで構成された、該下端部近傍よりも上方のコイルに比して加熱強度を高めた下端側コイルであることを特徴とする請求項1に記載のシリコン製造装置。
- [5] 前記下端側コイルが、その上方のコイルのコイルピッチに比して短いコイルピッチで形成されていることを特徴とする請求項4に記載のシリコン製造装置。
- [6] 前記下端側コイルが、拡張方向へ多重に巻回された複数のコイルからなることを特徴とする請求項4に記載のシリコン製造装置。
- [7] 前記下端側コイルが、その上方のコイルとは独立に高周波電力が制御されるコイルからなることを特徴とする請求項4に記載のシリコン製造装置。
- [8] 前記反応管の外周側に、該反応管からの放熱を抑制する保温部材を設けたことを特徴とする請求項1〜7のいずれかに記載のシリコン製造装置。
- [9] 前記反応管の下端部が、該反応管の最下端と接する水平面と該反応管の中心軸との交点から、該水平面と成す角度が45度となる方向に向かう直線と、

前記反応管の開口形状を均等に2分割する直線のうち最短となる直線上から該反応管の内周面に沿って軸方向に向かう垂線との交点を上限とする範囲であることを特徴とする請求項1〜8のいずれかに記載のシリコン製造装置。

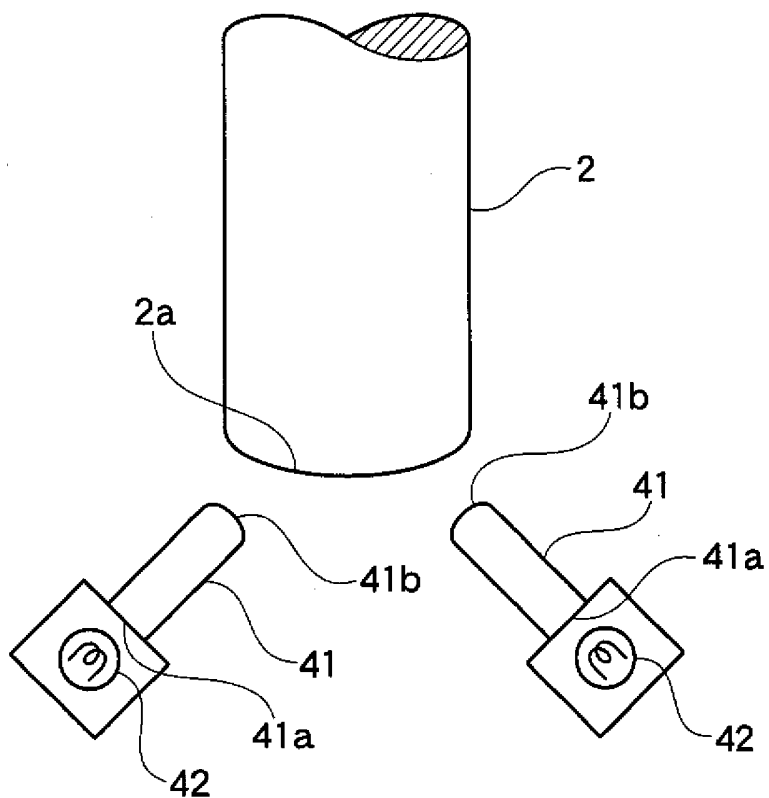
[図2]



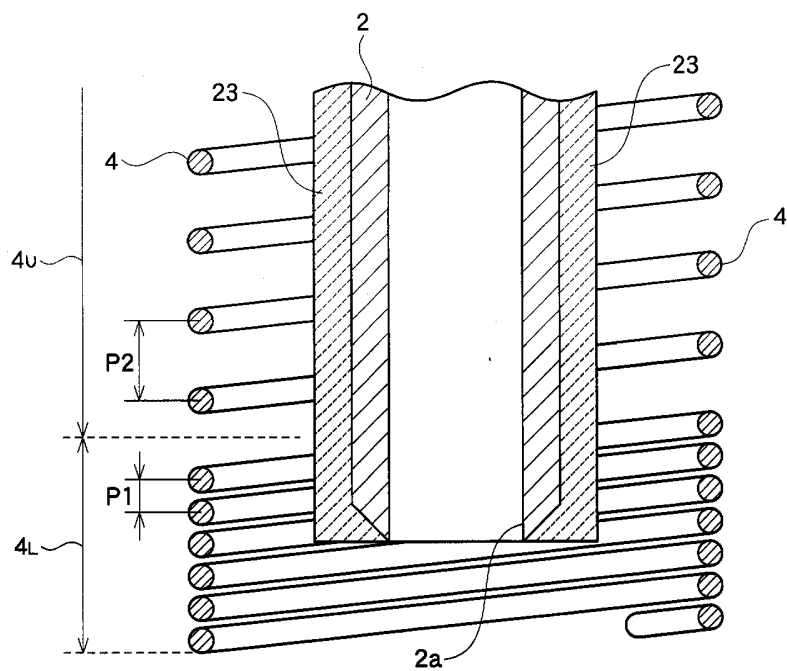
[図3]



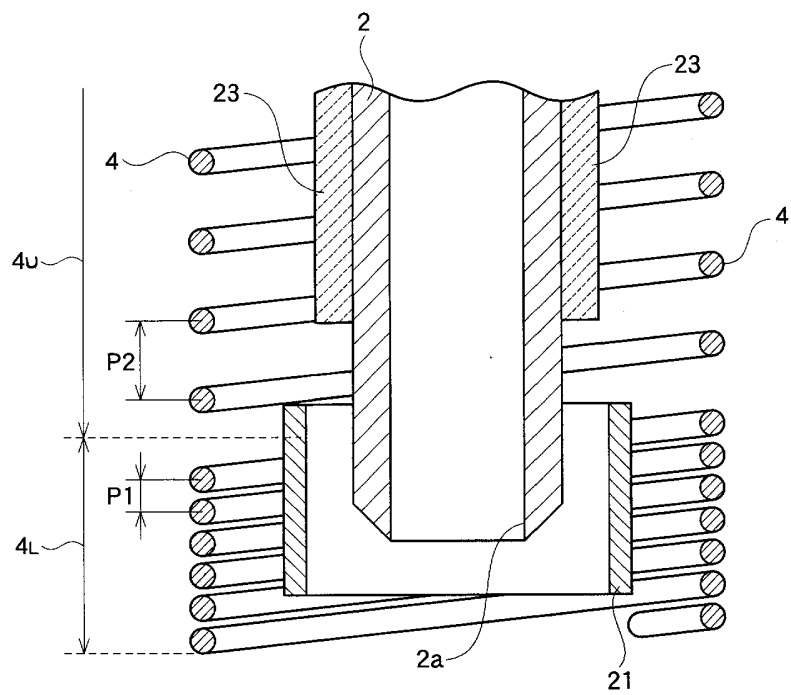
[図4]



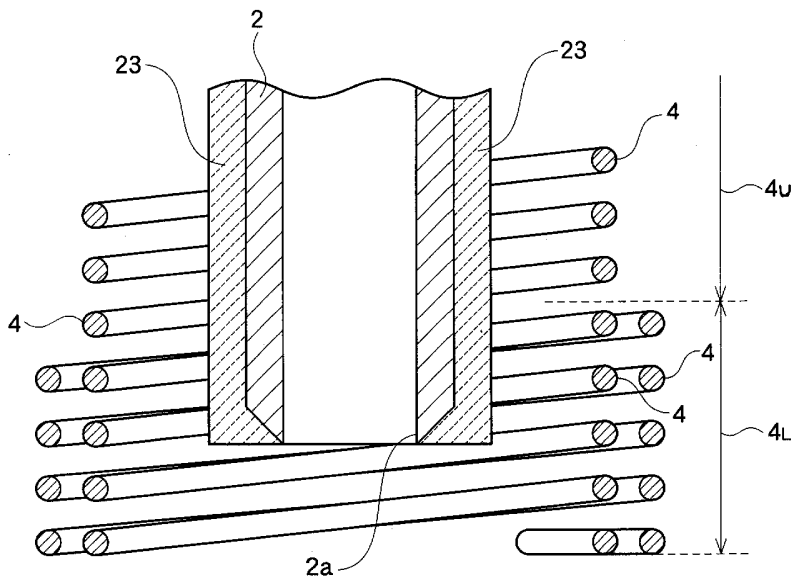
[図5]



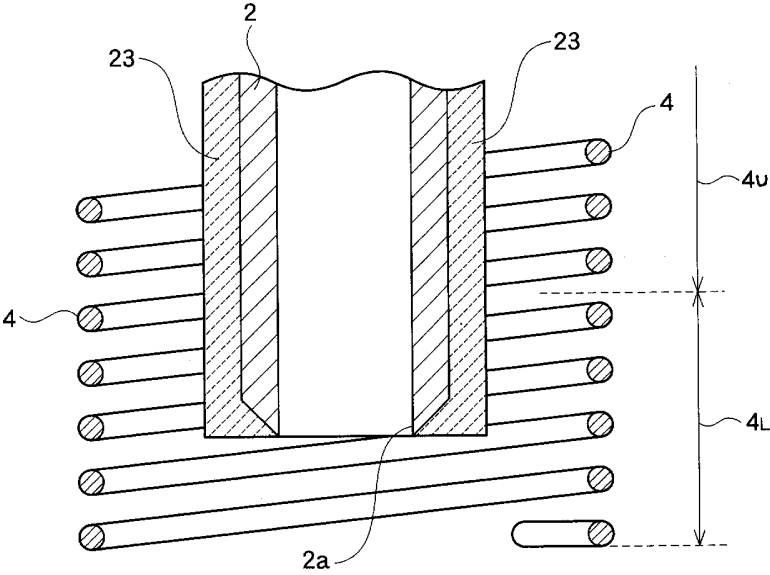
[図6]



[図7]

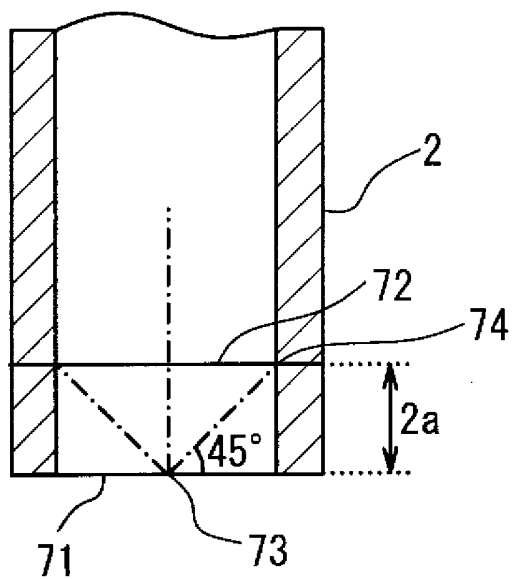


[図8]

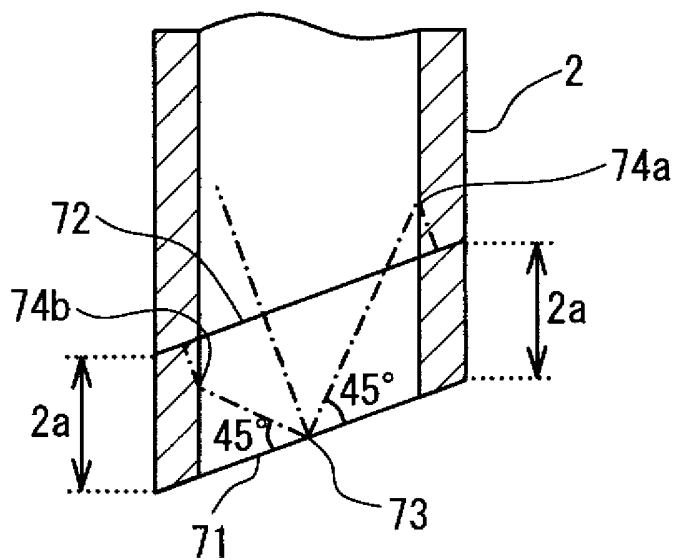


[図9]

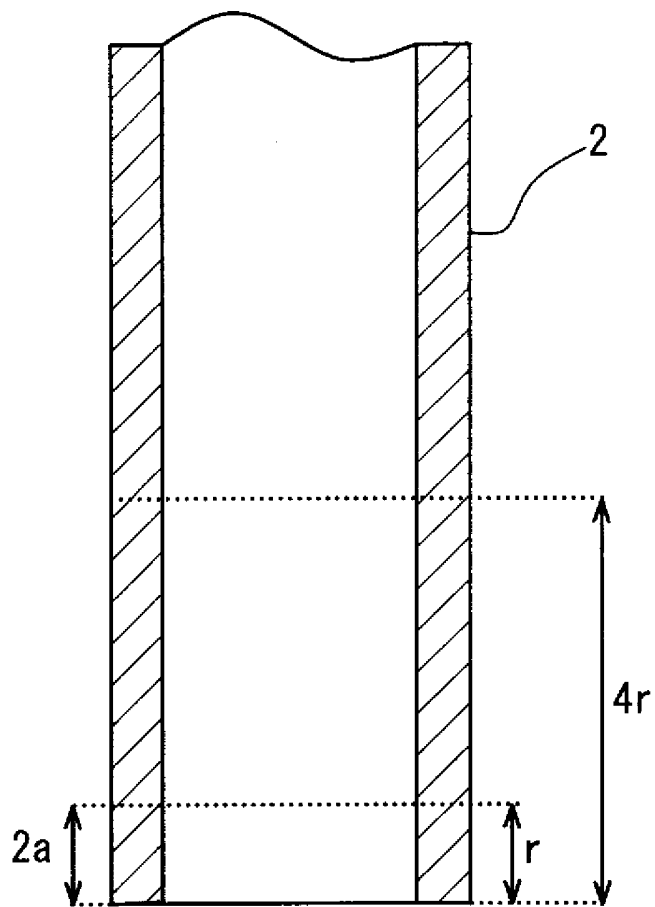
(a)



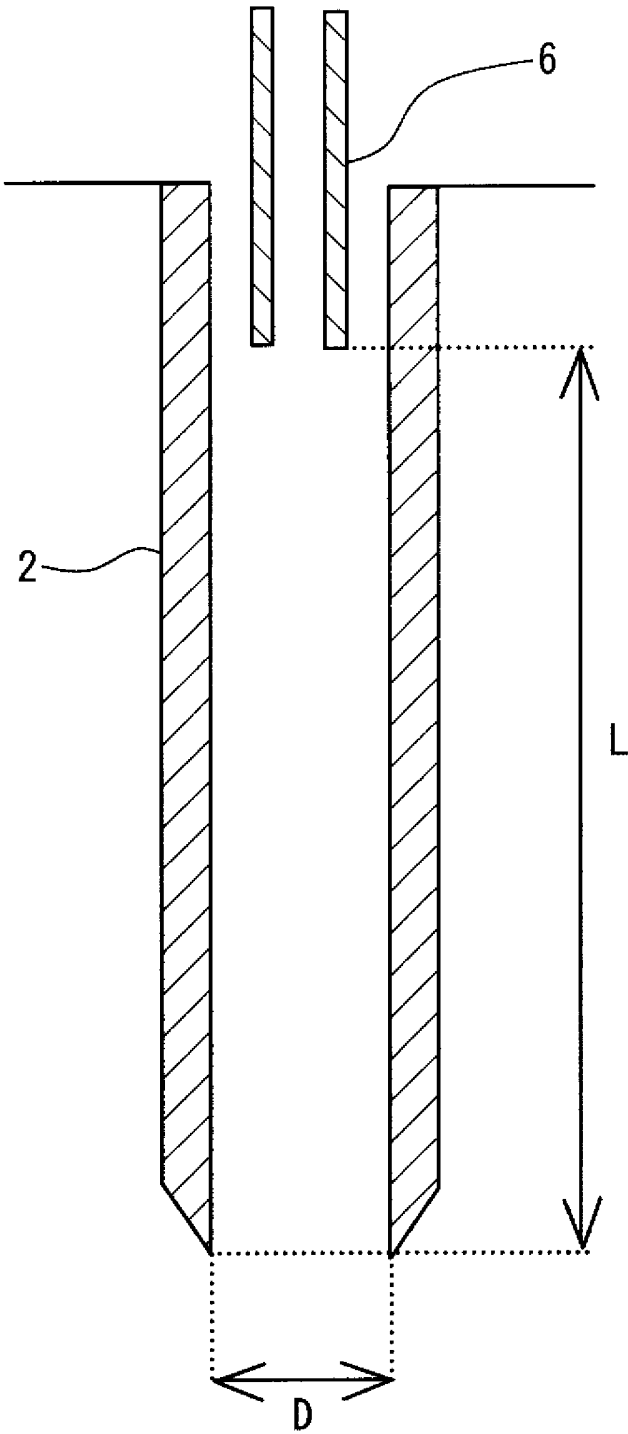
(b)



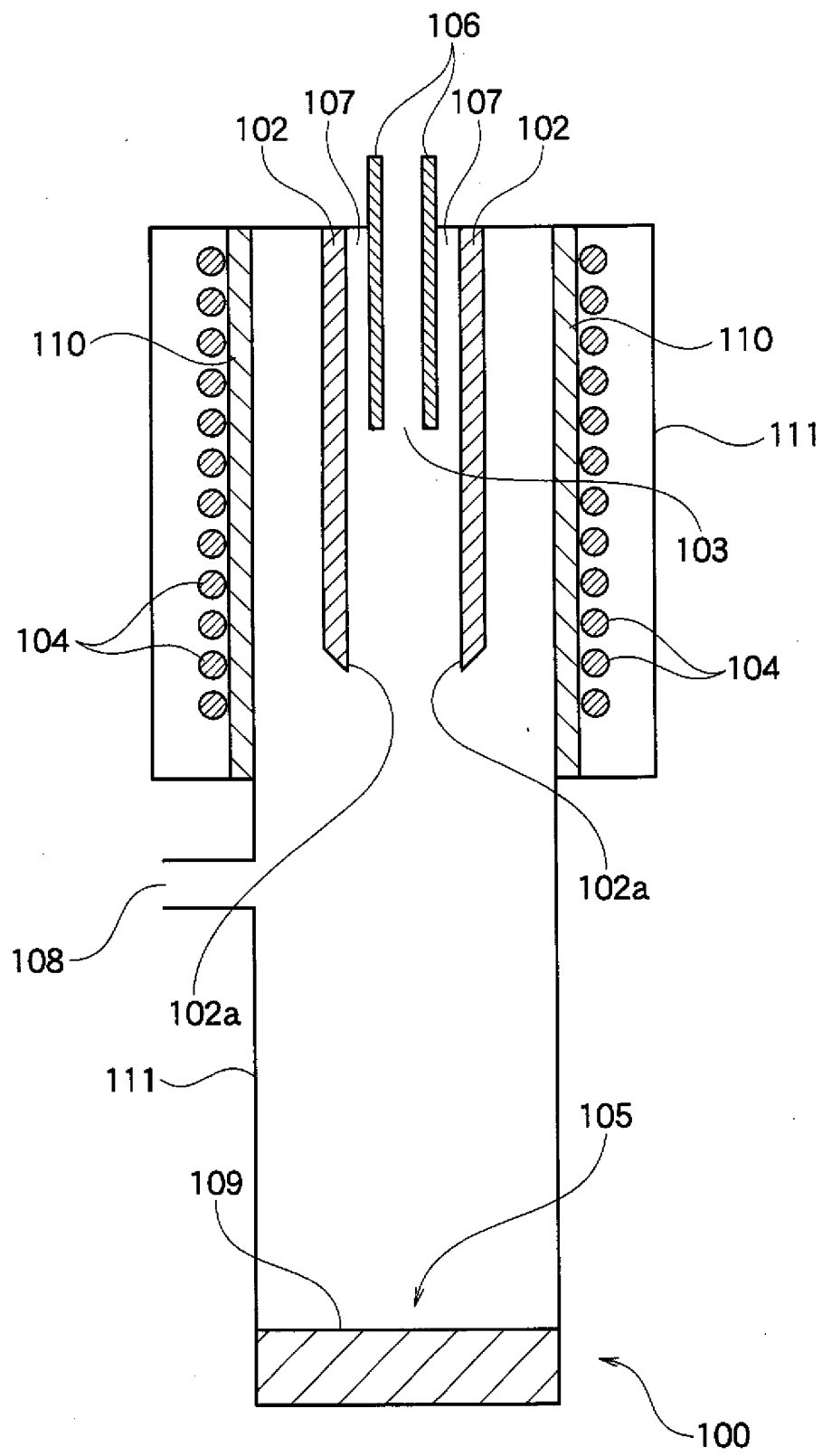
[図10]



[図11]



[図12]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/011774

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C01B33/03		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ C01B33/03		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2003-2628 A (Tokuyama Corp.), 08 January, 2003 (08.01.03), Claims; Par. Nos. [0007] to [0012], [0016], [0021], [0028]; examples; Fig. 1 (Family: none)	1, 4-9 2, 3
A	JP 2003-20216 A (Tokuyama Corp.), 24 January, 2003 (24.01.03), Claims; Par. Nos. [0014] to [0017]; examples; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-9
A	JP 2003-20217 A (Tokuyama Corp.), 24 January, 2003 (24.01.03), Claims; examples; Par. Nos. [0010] to [0011]; Fig. 1 (Family: none)	1-9
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 26 October, 2004 (26.10.04)		Date of mailing of the international search report 09 November, 2004 (09.11.04)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/011774

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-2627 A (Tokuyama Corp.), 08 January, 2003 (08.01.03), Claims; examples; Par. No. [0028]; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C01B33/03

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C01B33/03

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A A A	JP 2003-2628 A(株式会社トクヤマ)2003.1.8 特許請求の範囲, 【0007】 - 【0012】, 【0016】, 【0021】, 【0028】, 実施例, 図1(ファミリーなし) JP 2003-20216 A(株式会社トクヤマ)2003.1.24 特許請求の範囲, 【0014】 - 【0017】, 実施例, 図1-3(ファミリーなし) JP 2003-20217 A(株式会社トクヤマ)2003.1.24 特許請求の範囲, 実施例, 【0010】 - 【0011】, 図1(ファミリーなし)	1, 4-9 2, 3 1-9 1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 10. 2004

国際調査報告の発送日

09.11.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大工原 大二

4G

9343

電話番号・03-3581-1101 内線 3416

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2003-2627 A(株式会社トクヤマ)2003.1.8 特許請求の範囲, 実施例, 【0028】 , 図1-3(ファミリーなし)	1-9